

**Manuel D. Barriga Carrasco**

**SIMULACIÓN DEL TRÁNSITO  
DE IONES  $H_n^+$  A TRAVÉS DE  
LÁMINAS DELGADAS**

I.S.B.N. Ediciones de la UCLM  
978-84-8427-563-3

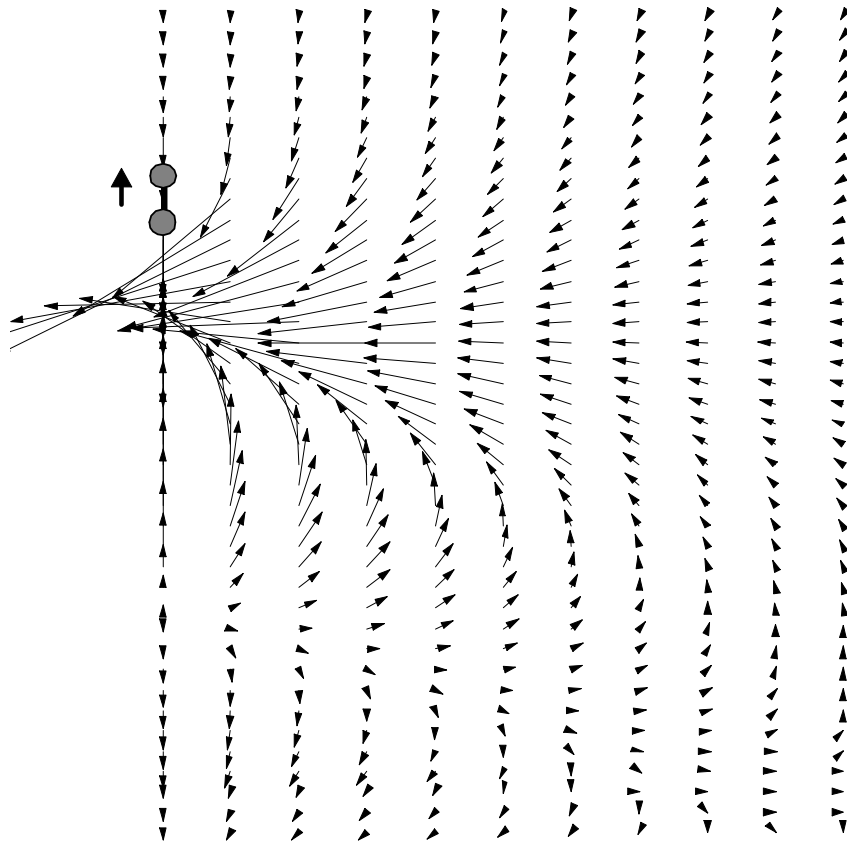


---

Ediciones de la Universidad  
de Castilla-La Mancha

Cuenca, 2007

# Simulación del tránsito de iones $H_n^+$ a través de láminas delgadas



TESIS DOCTORAL DE MANUEL D. BARRIGA CARRASCO

*A Blanca y a toda mi familia...*

# Índice general

<b>Introducción</b>	<b>3</b>
<b>1. Fundamentos teóricos</b>	<b>11</b>
1.1. Interacciones del proyectil atómico . . . . .	11
1.1.1. Interacciones electrónicas . . . . .	12
1.1.2. Pérdida-captura electrónica . . . . .	13
1.1.3. Interacciones nucleares . . . . .	15
1.2. Interacciones del proyectil molecular . . . . .	17
1.2.1. Efectos de vecindad electrónicos . . . . .	18
1.2.2. Pérdida-captura electrónica . . . . .	20
1.2.3. Explosión coulombiana . . . . .	22
<b>2. Métodos de simulación</b>	<b>25</b>
2.1. Orientación inicial de los iones moleculares . . . . .	26
2.2. Dinámica molecular del movimiento de iones . . . . .	29
2.3. Método Monte Carlo para la dispersión nuclear . . . . .	30
2.4. Método asintótico para la explosión coulombiana . . . . .	34
<b>3. Tránsito de iones <math>\text{H}_2^+</math></b>	<b>41</b>
3.1. Geometría inicial . . . . .	42
3.2. Vida media . . . . .	46
3.3. Frenado electrónico del ion $\text{H}_2^+$ . . . . .	50
3.4. Recombinación del ion $\text{H}_2^+$ . . . . .	59
3.5. Distribuciones de energía de iones $\text{H}_2^+$ . . . . .	64
3.5.1. Bajas energías . . . . .	66
3.5.2. Energías intermedias . . . . .	70
3.5.3. Altas energías . . . . .	75
3.6. Distribuciones de energía de iones $\text{H}^+$ . . . . .	77

3.6.1. Bajas energías . . . . .	78
3.6.2. Energías intermedias . . . . .	84
<b>4. Tránsito de iones <math>H_3^+</math></b>	<b>89</b>
4.1. Geometría inicial . . . . .	92
4.2. Vida media . . . . .	94
4.3. Frenado electrónico del ion $H_3^+$ . . . . .	99
4.4. Efectos de vecindad $H_2^+-H^+$ . . . . .	105
4.5. Distribuciones de energía de iones $H_2^+$ . . . . .	113
4.5.1. Energías intermedias . . . . .	116
4.5.2. Altas energías . . . . .	118
4.6. Distribuciones de energía y ángulo de iones $H^+$ . . . . .	120
4.7. Geometría a la salida de la lámina . . . . .	129
<b>5. Tránsito de iones <math>H_n^+</math></b>	<b>141</b>
5.1. Geometría inicial . . . . .	141
5.2. Modelo para la pérdida y captura electrónica . . . . .	145
5.3. Distribuciones de energía y ángulo de fragmentos disociados de $H_n^+$ . . . . .	149
<b>Resumen, conclusiones y publicaciones</b>	<b>161</b>
<b>Summary, conclusions and publications</b>	<b>191</b>
<b>Apéndices</b>	<b>217</b>
<b>A. Unidades atómicas y de espesor</b>	<b>219</b>
<b>B. Resumen del programa de simulación</b>	<b>223</b>
<b>C. Distancias internucleares iniciales del ion <math>H_2^+</math></b>	<b>231</b>
<b>D. Convolución</b>	<b>243</b>
<b>E. Artículos</b>	<b>247</b>
<b>Referencias</b>	<b>279</b>

# Introducción

Los estudios sobre interacción de partículas cargadas con la materia han sido, desde principios del siglo XX, uno de los temas de mayor interés dentro del ámbito de la física. Uno de los problemas fundamentales en los estudios sobre interacción de partículas cargadas con la materia es tratar de lograr una descripción de la dispersión y pérdida de energía de la partícula incidente cuando interacciona con un blanco determinado, así como de los procesos de excitación electrónica que tienen lugar en el mismo.

Desde el trabajo pionero de Rutherford [1911] donde, bombardeando láminas delgadas de metales con partículas  $\alpha$ , analizó por primera vez la estructura de la materia, se ha avanzando constantemente en este área. Bohr [1913] fue el primero en establecer una teoría que describía la interacción del proyectil con los electrones del medio. Posteriormente, Bethe [1930] y Bloch [1933], realizando un estudio cuántico del problema, dedujeron resultados similares a los obtenidos por Bohr. En 1940 Fermi [1940] comenzó a utilizar el formalismo dieléctrico para estudiar el frenado de partículas cargadas en medios materiales; pero esta técnica empezó a usarse con más asiduidad diez años más tarde. En 1954 Lindhard [1954] fue capaz de obtener una expresión analítica para la función dieléctrica de un sólido, descrito mediante un gas de electrones, usando teoría cuántica de perturbaciones. A través de la función dieléctrica del material era posible conocer el comportamiento del sólido frente a perturbaciones externas; de este modo Lindhard y Winther [1964] calcularon el poder de frenado de un gas de electrones e hicieron la primera teoría unificada para describir el frenado de proyectiles cargados, prediciendo el frenado y el alcance de iones energéticos en sólidos con una aproximación bastante aceptable.

Otro estudio referente a los proyectiles es el análisis de los estados de carga de los iones que atraviesan una lámina delgada [Gaillard *et al.* 1977, 1978a, Laubert y Chen 1978]. La probabilidad de existencia de cada estado de

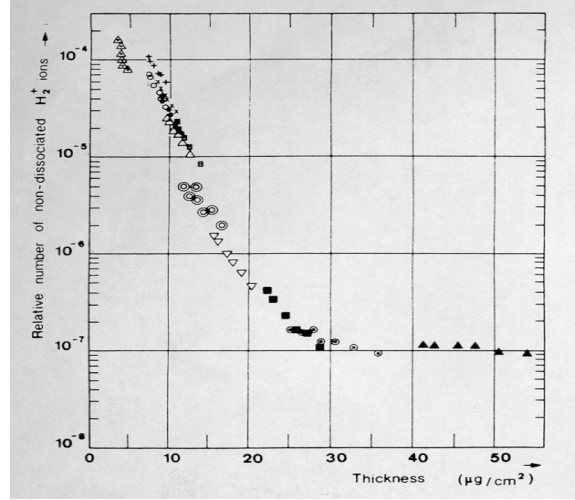


Figura 1: Reproducción de los datos obtenidos por Poizat y Remillieux [1971] sobre el número relativo de iones  $\text{H}_2^+$  no disociados procedentes de un haz de iones  $\text{H}_2^+$  que inciden en una lámina de carbono con una energía inicial de 2 MeV.

carga depende de varios factores, como son la velocidad y la carga del ion, y débilmente de la densidad electrónica del medio [Allison 1958]. Como depende débilmente del material y por el hecho de que datos experimentales para un mismo proyectil en diversos materiales den como resultado aproximadamente las mismas probabilidades de los estados de carga después de atravesarlos [Phillips 1955], se pensó en un principio que los procesos de pérdida y captura se producían mayormente en la superficie. Después se ha visto que estos procesos podrían tener lugar durante todo el viaje por el interior del material [Arnau 1989].

Un caso de especial interés dentro del campo de investigación del frenado de proyectiles cargados es el estudio de los proyectiles moleculares y de los fragmentos que viajan juntos procedentes de la disociación de estos proyectiles moleculares. Aunque la interacción de partículas atómicas con sólidos se analizó con gran detalle, el estudio de la interacción de agregados moleculares con medios materiales se empezó a desarrollar más tarde [Poizat y Remillieux 1971]. Los laboratorios no dispusieron de la posibilidad técnica de producir agregados formados por un gran número de átomos y a energías cinéticas relativamente altas hasta la década de 1970. A partir de entonces,

el estudio de las interacciones entre haces moleculares energéticos con sólidos cobró un renovado interés, tanto teórico [Brandt *et al.* 1974, Brandt y Ritchie 1976, Remillieux 1980] como experimental [Gemmell *et al.* 1975, Gaillard *et al.* 1975, Cue *et al.* 1979b y 1980a].

Uno de los primeros fenómenos descubiertos fue que estos iones moleculares se transmitían, al igual que los proyectiles atómicos, después de penetrar en la lámina [Poizat y Remillieux 1971, Gaillard *et al.* 1976]; la figura 1 reproduce los datos hallados por Poizat y Remillieux en 1971 sobre el número relativo de iones  $H_2^+$  no disociados que atraviesan una lámina de carbono amorfo cuando incide un haz de iones  $H_2^+$  con una energía inicial de 2 MeV. Puede observarse cómo decae la fracción de iones  $H_2^+$  transmitidos a medida que aumenta el espesor de la lámina, hasta que se estabiliza para un espesor determinado (ver unidades en el apéndice A).

Pero también se descubrió que una parte de estos proyectiles moleculares se disociaban en sus iones constituyentes. En las distribuciones de energía y de ángulo de los fragmentos disociados emergentes se dieron evidencias de que existían ciertos efectos que no podían ser atribuidos a una transmisión independiente de estos fragmentos [Brandt *et al.* 1974, Gemmell *et al.* 1975]. La figura 2 es una reproducción de los datos experimentales y los cálculos obtenidos por Brandt *et al.* [1974] para el ratio de la pérdida de energía de las moléculas  $H_2^+$  y  $H_3^+$  frente a la del protón a la misma velocidad. Esta figura muestra que los protones que viajan de forma correlacionada se frenan de forma diferente a cómo lo harían si viajaran solos. A los efectos responsables de este comportamiento se les denominó efectos de vecindad; su origen radica en las interferencias producidas por las excitaciones electrónicas del blanco debidas al movimiento correlacionado de las partículas que forman la molécula.

Siempre se creyó que cuando una molécula incidía sobre un material perdía sus electrones de ligadura y se disociaba en sus fragmentos rápidamente. Esto quedaba desmentido por el hecho de encontrar proyectiles moleculares transmitidos a altas energías [Gaillard *et al.* 1975, Cue *et al.* 1979b, 1980a, Remillieux 1980, Brandt y Ritchie 1976] donde se demostró que transcurre un cierto tiempo considerable hasta que el proyectil molecular se disocia.

También se prosiguió en los estudios de los efectos de vecindad tanto teóricamente [Brandt y Ritchie 1976, Arista 1978] como experimentalmente [Tape *et al.* 1976, Eckardt *et al.* 1978, Escovitz *et al.* 1979a, 1979b, Laubert 1979, Levi-Setti *et al.* 1982]. La mayoría de estos trabajos se centran en el



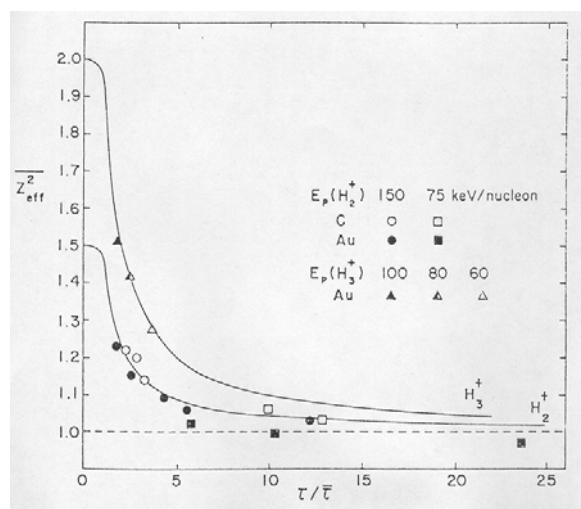


Figura 2: Reproducción de los datos y cálculos obtenidos por Brandt *et al.* [1974] para el ratio entre la energía perdida de las moléculas  $\text{H}_2^+$  y  $\text{H}_3^+$  frente a la energía perdida por protones con la misma velocidad.

estudio de la pérdida de energía de los fragmentos resultantes de la disociación molecular, y cómo esta energía perdida queda modificada por los efectos de vecindad que ejercen los fragmentos procedentes de una misma disociación.

Aparte de los estudios de la transmisión y pérdida de energía, se han realizado trabajos cuyo objetivo era la determinación de la estructura geométrica de iones moleculares detectando los fragmentos de las moléculas disociadas [Gemmell *et al.* 1975, Gemmell 1981]. También tiene interés el paso de agregados a través de plasmas [Bret y Deutsch 1993, Bringa y Arista 1995, Deutsch y Maynard 2000], puesto que los agregados de iones pueden usarse como inductores de la fusión por confinamiento inercial, dada la gran densidad de energía que son capaces de depositar en un material.

Los trabajos dedicados a la interacción de agregados moleculares grandes con la materia son escasos, sin embargo hay que mencionar recientes publicaciones experimentales relacionadas con la interacción de moléculas de hidrógeno o carbono con sólidos [Farizon *et al.* 1992, Ray *et al.* 1992, Fritz *et al.* 1994, Susuki *et al.* 1994] o trabajos teóricos sobre el mismo tema [Steuer y Ritchie 1989, Sigmund 1992, Wang y Ma 1993, Jakas y Capuj 1995, Kaneko 1995, Pérez-Pérez *et al.* 1997, Abril *et al.* 1998, Arista 2000].

Además del interés académico que despiertan los temas de la incidencia de proyectiles atómicos y moleculares en materiales, existe un claro interés en la física aplicada [Gras-Martí *et al.* 1991]. En la industria de la microelectrónica interesa conocer cómo pierden energía las partículas cargadas al interaccionar con la materia, tanto para evitar el dañado de componentes como para la fabricación de los mismos mediante el dopado por implantación iónica [Ryssel y Glawischning 1982, Ziegler 1988]. La limpieza de superficies y el depósito de capas finas son otras dos áreas donde se ha demostrado la gran utilidad del bombardeo con iones energéticos, ya que dan lugar al fenómeno de sputtering. Además existen múltiples técnicas espectroscópicas que permiten analizar propiedades de los materiales (SIMS, Secondary Ion Mass Spectroscopy; AES, Auger Electron Spectroscopy; RBS, Rutherford Backscattering Spectroscopy) y que usan las partículas cargadas energéticas como herramientas de análisis [Pruyton 1984]; incluso en áreas tan distantes como la catálisis [Brongersma y van Santen 1991] se ha utilizado el bombardeo con haces de partículas. Otro campo donde también tiene interés el estudio de la interacción de partículas cargadas con sólidos es la medicina radioterapéutica o en estudios relacionados con la protección frente a la radiación [Turner 1995].

Actualmente persiste el interés y la actividad en la investigación sobre la interacción de proyectiles energéticos con la materia, ya que todavía hay problemas sin solucionar, a la vez que surgen nuevas aplicaciones y temas para estudiar. Prueba de que este campo de la física interesa a la comunidad científica en la actualidad, lo demuestran los diferentes congresos del área, tales como: ICACS (International Conference on Atomic Collisions in Solids), IBMM (Ion Beam Modification of Materials), IBA (Ion Beam Analysis), COSIRES (Computer Simulation of Radiation Effects in Solids), WBW (Werner Brandt Workshop), Conference on Polyatomic Ion Impact on Solids and Related Phenomena, etc.

En esta memoria vamos a desarrollar un modelo teórico que después implementaremos en un programa de simulación para analizar una gran cantidad de los datos experimentales relacionados con la interacción de iones moleculares y láminas delgadas obtenidos a partir de la década de 1970. En concreto, se han estudiado los fenómenos relacionados con el tránsito de agregados de hidrógeno  $H_n^+$  a través de láminas delgadas. El interés del estudio de los agregados de hidrógeno  $H_n^+$  se debe a que son los proyectiles moleculares más simples, pero a la vez en ellos se dan todas las interacciones básicas de los agregados moleculares.

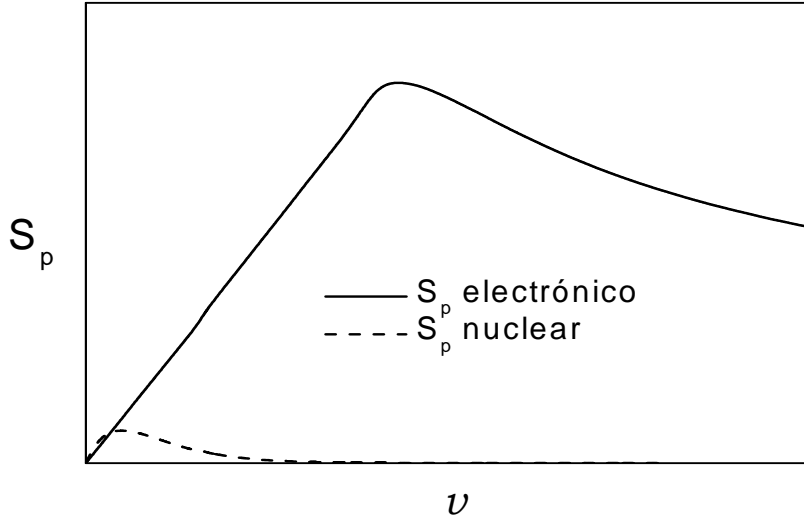


Figura 3: Poder de frenado electrónico y nuclear en función de la velocidad del proyectil. El frenado nuclear (- - -) domina a bajas velocidades, mientras que el electrónico (—) domina a altas velocidades.

Este trabajo va a continuar con los estudios ya iniciados por nuestro grupo de investigación [Denton 1997, Denton *et al.* 1996, 1997] sobre los denominados efectos de vecindad en la pérdida de energía de iones moleculares  $H_n^+$ . Para dar cuenta de estos efectos se desarrolló inicialmente un programa de simulación [Denton 1997] que describe la interacción de los fragmentos disociados de haces moleculares  $H_2^+$  con la materia condensada. En el presente trabajo hemos mejorado dicho programa, generalizando su uso a cualquier tipo de ion molecular  $H_n^+$  e incluyendo diversos fenómenos que no fueron incorporados previamente.

En el capítulo 1 estudiaremos las interacciones que sufren los proyectiles con el medio material. Los proyectiles experimentan dos procesos diferenciados: la pérdida de energía y la variación de su dirección inicial, o dispersión. Estos procesos se deben a los diversos tipos de interacción que sufre el proyectil con el blanco y con los otros fragmentos que le acompañan.

Dentro de las interacciones con el blanco, podemos hacer una primera distinción entre las colisiones sufridas con los electrones y las sufridas con los núcleos del material. Se puede hacer esta distinción, en primer lugar, debido

a que las interacciones con los electrones del material se dan en un rango de acción diferente a las interacciones que se producen con los núcleos (la figura 3 ilustra el predominio del frenado,  $S_p$ , electrónico a velocidades altas mientras que el frenado,  $S_p$ , nuclear predomina a velocidades bajas) y, en segundo lugar, debido a que la variación de la dirección inicial del fragmento se debe mayormente a las interacciones nucleares y no a las interacciones electrónicas.

En cuanto a las interacciones que sufre el proyectil con los otros fragmentos vecinos procedentes de la disociación de una misma molécula, podemos distinguir entre los efectos de vecindad, debido a las excitaciones electrónicas del blanco, y la fuerza coulombiana, resultado de la interacción directa entre iones.

Además, en el presente trabajo se estudiarán los procesos de captura y pérdida electrónica de los proyectiles, y cómo estos procesos afectan a las diversas interacciones que experimentan los proyectiles. Al introducir los estados de carga de cada proyectil en el método de simulación, se puede estudiar su efecto sobre los espectros energéticos experimentales, pudiendo ser éste un método para estimar los estados de carga de diversos iones en distintos materiales.

Los procesos de pérdida y captura se producen debido a que los núcleos iónicos que han perdido sus electrones de ligadura quedan cargados positivamente y capturan electrones mientras que viajan a través del medio. Una vez que han capturado electrones vuelven a perderlos al interactuar con los electrones y los núcleos del material, variando su estado de carga.

En el capítulo 1 presentamos los modelos teóricos que caracterizan las interacciones del proyectil anteriormente explicadas. En este trabajo haremos uso del formalismo dieléctrico para describir las interacciones electrónicas. El formalismo dieléctrico nos servirá para analizar el frenado electrónico y los efectos de vecindad entre los fragmentos disociados de los proyectiles moleculares. Las unidades que utilizaremos a lo largo de todo este trabajo son las unidades atómicas ( $m_e = e = \hbar = 1$ ,  $\varepsilon_0 = 1/4\pi$ ), salvo que se diga lo contrario. En el apéndice A aparece la relación entre las unidades atómicas y las unidades del sistema internacional (S.I.).

A continuación, en el mismo capítulo 1, se describen las interacciones con los núcleos del material. Para el análisis de estos efectos vamos a utilizar la teoría clásica de la dispersión, donde trataremos a los proyectiles y a los núcleos del material como núcleos con una cierta sección eficaz de impacto. En cambio, para las interacciones electrónicas trataremos a los proyectiles

según su densidad de carga y para la “explosión coulombiana” trataremos a los proyectiles como iones puntuales.

El capítulo 2 presenta los métodos de cálculo que se usan en este trabajo para implementar en nuestro programa de simulación los efectos descritos en el capítulo 1. Nuestro programa de simulación resuelve las ecuaciones de movimiento del proyectil molecular y de cada uno de sus fragmentos mediante un código de dinámica molecular. En el primer apartado del capítulo se estudia un método para orientar aleatoriamente la molécula inicial, ya que su orientación inicial condiciona notablemente los resultados finales. En el siguiente apartado se describe el mecanismo de dinámica molecular que sigue la evolución de las partículas paso a paso; este mecanismo nos sirve para calcular las posiciones y la velocidad de éstas en cada instante. En un tercer apartado se explica un método de simulación tipo Monte Carlo desarrollado por Zajfman *et al.* [1990] para la dispersión clásica entre el proyectil y los núcleos del material, y el cuarto apartado describe un método asintótico para calcular la explosión coulombiana en el vacío entre dos fragmentos disociados.

Una forma de conocer si tanto nuestra teoría como nuestro programa de simulación funcionan correctamente es a través de la comparación de nuestros cálculos con los resultados experimentales. A lo largo de los capítulos 3, 4 y 5, sobre el tránsito en láminas delgadas de los iones  $H_2^+$ ,  $H_3^+$  y  $H_n^+$  ( $n = 5, 7$  y  $9$ ) respectivamente, se comparan los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación para este tránsito de estos iones moleculares con datos experimentales obtenidos de la bibliografía.

Por último, junto al resumen final, se presentan las conclusiones y las aportaciones más destacadas de este trabajo.

En resumen, esta memoria implementa en un programa de simulación las interacciones que tienen lugar cuando proyectiles moleculares de hidrógeno inciden sobre láminas delgadas, haciendo hincapié en nuevos cálculos sobre la transmisión y la recombinación de los proyectiles moleculares originales de hidrógeno, y en los procesos de pérdida-captura electrónica entre los fragmentos disociados de estos proyectiles.

# Capítulo 1

## Fundamentos teóricos

En este capítulo vamos a presentar la base teórica necesaria para estudiar las interacciones que sufre un proyectil molecular al viajar a través de una lámina. Dividiremos estas interacciones en dos grupos: las interacciones propias de proyectiles atómicos y las interacciones adicionales que experimentan los fragmentos que provienen de la disociación de proyectiles moleculares. Estudiaremos cada fragmento de la disociación como si fuera un proyectil atómico y después añadiremos las interacciones moleculares con los otros fragmentos procedentes de la misma disociación.

Los efectos moleculares se analizarán binariamente con cada vecino y después serán sumados. Por ejemplo, para el caso de la molécula de  $\text{H}_3^+$  los efectos de vecindad que el protón 2 ejerce sobre el protón 1 se sumarán a los efectos del 3 sobre el 1 para modificar el estado del protón 1. Todas estas interacciones están implementadas en el programa de simulación desarrollado por nuestro grupo de investigación, mediante una serie de métodos que se explicarán en el capítulo 2.

### 1.1. Interacciones del proyectil atómico

En las interacciones de los proyectiles atómicos con un sólido se pueden distinguir dos efectos principales: la interacción con el medio electrónico del material y la interacción con los núcleos del material.

Se puede hacer esta distinción por muchos motivos. En primer lugar, por la posición dentro del material los núcleos del material están más localizados, mientras que los electrones que los envuelven están más deslocalizados,

sobretudo los electrones de las capas más externas del átomo.

Otra distinción sería en cuanto al rango de acción de las interacciones; las interacciones con los electrones del material tienen más importancia a altas energías mientras que las interacciones con los núcleos del material tienen más importancia a bajas energías. No sólo eso, la variación de la dirección inicial en la que viaja el proyectil se debe mayormente a las interacciones nucleares y no a las interacciones electrónicas.

Por último se puede establecer una distinción en cuanto a las escalas de tiempo, ya que la interacción electrónica se da aproximadamente entre los  $10^{-17}$  y  $10^{-16}$  s y la dispersión nuclear entre los  $10^{-15}$  y  $10^{-14}$  s [Pérez-Pérez *et al.* 1997].

### 1.1.1. Interacciones electrónicas

Las interacciones del proyectil con el medio electrónico del material las explicamos a partir del formalismo dieléctrico, en el cual se describe la respuesta del medio electrónico a perturbaciones externas mediante la función dieléctrica  $\epsilon(\vec{k}, \omega)$ , donde  $k$  y  $\omega$  son el módulo del momento  $\vec{k}$  y la energía transferida que pueden tener las excitaciones del medio electrónico.

Fue Fermi [1940] el primero en utilizar un formalismo dieléctrico para estudiar la pérdida de energía debida a las interacciones de proyectiles cargados con los electrones del material a través del cual viajan. Lindhard obtuvo una expresión analítica para la función dieléctrica del material frenante, base del formalismo dieléctrico, que más tarde ampliaba en una teoría unificada de la descripción del frenado de proyectiles cargados [Lindhard 1954]. Desde entonces se han establecido muchos modelos basados en el formalismo dieléctrico; pero en este trabajo se empleará un formalismo basado en una función de pérdida energética [Abril *et al.* 1994, 1998, Planes *et al.* 1996, Moreno-Marín *et al.* 2002] que permitirá ajustar adecuadamente a los datos experimentales la función de pérdida energética del medio frenante.

Si operamos en el espacio de Fourier, podemos obtener el poder de frenado electrónico del material para una partícula con una densidad de carga  $\rho(\vec{r}, t)$  que viaja a través del medio con una velocidad constante  $\vec{v}$ . Este frenado se produce debido al potencial inducido por esta densidad de carga en el medio electrónico de la lámina [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]:

$$S_p = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho^2(k). \quad (1.1)$$

Esta expresión depende del módulo del vector de onda ( $\vec{k}$ ) porque consideramos un medio isótropo.

Vemos que el frenado de la densidad de carga depende directamente de sí misma a través de la transformada de Fourier  $\rho(k)$  de su densidad de carga y de su velocidad, mientras que sólo depende del medio frenante a través de la función de pérdida energética (ELF, energy loss function),  $\text{Im}[-1/\epsilon(k, \omega)]$ . Se han establecido muchos modelos de funciones de pérdida de energía para describir el material frenante, pero es una combinación lineal de funciones de pérdida, obtenidas a partir de la función dieléctrica propuesta por Mermin [1970] para las excitaciones de los electrones externos y una aproximación hidrogénica de la intensidad generalizada de oscilador para electrones internos [Moreno-Marín *et al.* 2002], la que se utilizará en este trabajo.

En realidad, si lanzamos un haz de partículas no todas se frenarán lo mismo (figura 1.1), ya que el frenado electrónico es un proceso estadístico. El frenado electrónico depende a su vez de muchas cosas, entre las cuales podríamos mencionar que la densidad electrónica local no es la misma en todo el recorrido. Por ello es conveniente definir el “straggling”, como la varianza de la pérdida de energía  $\Delta E$  por unidad de recorrido  $\Delta z$ :

$$\Omega^2 = \frac{\langle (\Delta E - \langle \Delta E \rangle)^2 \rangle}{\Delta z} = \frac{\langle (\Delta E)^2 \rangle - \langle \Delta E \rangle^2}{\Delta z}, \quad (1.2)$$

donde  $\langle x \rangle$  significa valor medio de  $x$ . El straggling se calcula en el formalismo dieléctrico de la misma forma que el poder de frenado:

$$\Omega^2 = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \text{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho^2(k). \quad (1.3)$$

Este straggling provoca que la curva de distribución de la pérdida de energía por unidad de recorrido se ensanche entorno al valor medio de  $S_p$ , tal como se muestra en la figura 1.1.

### 1.1.2. Pérdida-captura electrónica

Otro efecto electrónico es la pérdida-captura electrónica. Cuando el proyectil incide sobre el material, pierde la mayoría de sus electrones ligados en las primeras capas del blanco. Una vez atravesadas estas primeras capas, el proyectil vuelve a capturar electrones del medio, para después soltarlos otra vez. Así se llega a un equilibrio de los estados de carga, cada uno de ellos



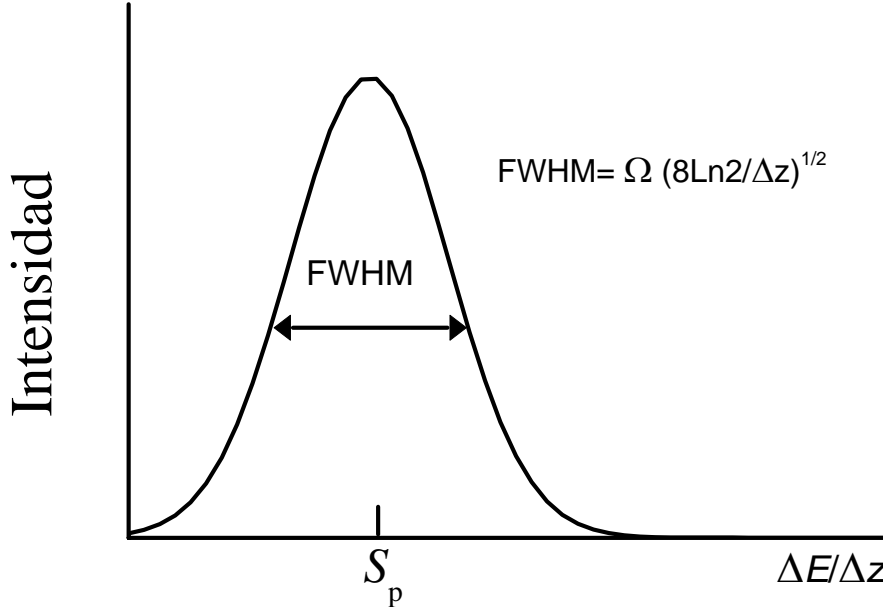


Figura 1.1: Esquema cualitativo de la distribución del poder de frenado de una lámina de espesor  $\Delta z$  para un proyectil. El ancho a mitad de altura de la distribución (FWHM, Full Width at Half Maximum) está relacionado con la desviación típica  $\Omega$ .

con distinta probabilidad, a lo largo de todo el recorrido en el material. Esta probabilidad dependerá sobre todo de la velocidad del ion y de su carga, y débilmente del material [Allison 1958]. Como depende débilmente del material y por el hecho de que datos experimentales para un mismo proyectil tras atravesar diversos materiales den como resultado aproximadamente las mismas probabilidades de los estados de carga [Phillips 1955], se pensó en un principio que los procesos de pérdida y captura se producían mayormente en la superficie. Posteriormente se ha visto que estos procesos se podrían dar durante todo el viaje por el interior del material [Arnau 1989].

Los estados de carga y su probabilidad son diferentes para cada proyectil, pero una vez conocidos los podemos incluir en nuestro programa de simulación. Entonces podremos comparar el hecho de introducir distintas probabilidades de carga en el interior o en la superficie, y ver qué probabilidad

es la que más se ajusta a los resultados experimentales.

Los estados de carga de los fragmentos atómicos en que se disocian los agregados de hidrógeno  $H_n^+$  son  $H^+$ ,  $H^0$  y el  $H^-$ . Para un rango de energías altas se puede despreciar la posibilidad del estado de carga  $H^-$  debido a la dificultad que supone la captura de un segundo electrón [de Castro Faria *et al.* 1986a]. Si la lámina es suficientemente gruesa se establece un equilibrio entre los procesos de pérdida y captura electrónica tal que [Funsten *et al.* 1993]:

$$\frac{1}{\rho} \frac{d\phi_+}{dz} = \sigma_p \phi_0 - \sigma_c \phi_+ = 0 \implies \frac{\phi_+}{\phi_0} = \frac{\sigma_p}{\sigma_c}, \quad (1.4)$$

donde  $\rho$  es la densidad atómica del material,  $z$  es el espesor penetrado,  $\phi_+$  y  $\phi_0$  son las fracciones del estado de carga del  $H^+$  y  $H^0$ , y  $\sigma_p$  y  $\sigma_c$  son las secciones eficaces de pérdida y captura electrónica, respectivamente.

Como sólo consideramos los estados  $H^+$  y  $H^0$ , la suma de las fracciones de los estados de carga ha de ser igual a 1 y, por tanto, deducimos de la ecuación anterior que:

$$\phi_+ = \frac{\sigma_p}{\sigma_p + \sigma_c} \quad (1.5)$$

y

$$\phi_0 = \frac{\sigma_c}{\sigma_p + \sigma_c}. \quad (1.6)$$

Al ser la suma de las fracciones igual a 1, tendrán el mismo valor que las probabilidades de sus respectivos estados de carga, por lo que a partir de ahora hablaremos indistintamente de fracción o probabilidad del estado de carga.

Para las interacciones nucleares, trataremos a los proyectiles y a los núcleos del material con una cierta sección eficaz de impacto según sus núcleos, por lo que cuando el proyectil sea un  $H^0$  se le considerará como un núcleo positivo. Mientras que para el cálculo de la fuerza coulombiana trataremos a los proyectiles como iones puntuales, por lo que consideraremos al átomo  $H^0$  como una carga puntual nula.

### 1.1.3. Interacciones nucleares

Las interacciones nucleares se deben a las colisiones elásticas entre el proyectil y los núcleos de los átomos que forman el material frenante, y son las causantes del cambio de la dirección del proyectil y de una pérdida de energía, que es bastante menor que la pérdida de energía que se produce en

las interacciones con los electrones del material (en el rango de la velocidad del proyectil que estudiamos).

Para el tratamiento de este efecto se ha utilizado la teoría clásica de la dispersión y una simulación tipo Monte Carlo. Para las interacciones nucleares, trataremos a los proyectiles como núcleos. Tanto los núcleos de los proyectiles como los núcleos del material tendrán una cierta sección eficaz de impacto.

En el sistema centro de masas, el ángulo  $\theta$  con que es dispersado un proyectil con una energía  $E$  y una masa  $M$  por un núcleo del material de masa  $M_n$  viene dado por [Goldstein 1977]:

$$\theta = \pi - 2s \int_{R_{\min}}^{\infty} \frac{dr}{r^2 \sqrt{1 - V(r)/E_r - s^2/r^2}} \quad (1.7)$$

donde  $E_r = 4MM_nE/(M + M_n)^2$  es la máxima energía transferible en una colisión,  $s$  es el parámetro de impacto,  $r$  es la distancia entre el proyectil y el centro de dispersión y  $R_{\min}$  es la distancia de mínimo acercamiento, que se obtiene haciendo cero el radicando del denominador de la ecuación anterior. La energía de interacción  $V(r)$  procede de un potencial coulombiano apantallado de tipo Thomas-Fermi [Nastasi *et al.* 1996]:

$$V(r) = \frac{ZZ_n}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right), \quad (1.8)$$

con la distancia de apantallamiento universal [Ziegler *et al.* 1985]:

$$a = 0.8854/(Z^{0.23} + Z_n^{0.23}). \quad (1.9)$$

Un esquema aclarativo de esta interacción se puede ver en la figura 1.2.

La energía  $T$  transferida al núcleo y, por tanto, perdida por el proyectil, está relacionada con el ángulo de dispersión  $\theta$  mediante [Goldstein 1977]:

$$T = \frac{4MM_nE}{(M + M_n)^2} \sin^2(\theta/2), \quad (1.10)$$

por lo que a mayor ángulo de dispersión mayor será la energía perdida. Conviene notar que a altas velocidades esta pérdida de energía es despreciable frente a la debida al frenado electrónico.

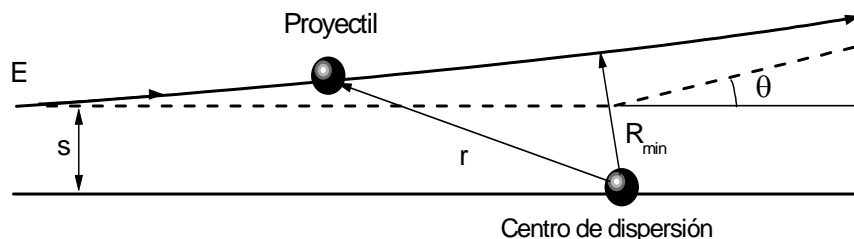


Figura 1.2: Colisión elástica en el sistema centro de masas.  $\theta$  es el ángulo de scattering,  $r$  es la distancia del proyectil al centro de dispersión,  $R_{\min}$  es el mínimo valor de  $r$  y  $s$  el parámetro de impacto.

## 1.2. Interacciones del proyectil molecular

Cuando los proyectiles moleculares se disocian en sus componentes, éstos, además de experimentar las mismas interacciones que los proyectiles atómicos, sufren otras interacciones debidas a la vecindad (o proximidad) de los fragmentos disociados de la misma molécula.

Las interacciones de vecindad propias de los proyectiles moleculares son principalmente dos, ya que se ha demostrado que el efecto de la dispersión coherente apenas representa una pequeña corrección frente a las otras interacciones, en el rango de energía que estudiamos [Garcia-Molina *et al.* 2000a]. Estas dos interacciones principales son: los efectos de vecindad causados por un fragmento sobre otro a través de excitaciones electrónicas en el medio por el que viajan, y los efectos de la fuerza coulombiana entre dos fragmentos. Como resultado queda un agregado de iones, que a medida que se mueven dentro del material interaccionan con éste, a la vez que se afectan entre ellos.

El efecto de vecindad a través del medio electrónico del material será analizado mediante el formalismo dieléctrico al ser un fenómeno electrónico. Por otro lado la fuerza coulombiana, será tratada como una “explosión coulombiana” debida a la repulsión mutua que se produce entre las partículas cargadas procedentes de la disociación de los proyectiles moleculares. Estas partículas quedan normalmente cargadas positivamente, ya que el proyectil

molecular pierde los electrones más externos antes de disociarse, dando lugar a una repulsión entre ellas. Mientras que en las interacciones electrónicas tratábamos a los proyectiles según su densidad de carga, para la “explosión coulombiana” trataremos a los proyectiles como iones puntuales.

### 1.2.1. Efectos de vecindad electrónicos

Los efectos de vecindad electrónicos se dan a través del campo inducido por los iones en los electrones del material que forma el blanco. Como hemos dicho en la introducción del capítulo, en este apartado también emplearemos el formalismo dieléctrico para analizar cómo el campo inducido por un ion en el medio electrónico actúa sobre los otros iones que le acompañan.

El problema de las fuerzas de vecindad que produce un ion, que se mueve con una cierta velocidad a través de un medio electrónico, sobre otro ion, que le acompaña, tiene simetría cilíndrica respecto a la velocidad del ion que produce la fuerza.

Si trabajamos en el espacio de Fourier, las fuerzas de vecindad inducidas por un ion (descrito como una densidad de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  moviéndose a una velocidad  $\vec{v}$ ) sobre otro ion (descrito como una densidad de carga  $\rho_{\text{ext2}}$  y situado a unas distancias  $z'$  y  $\rho$  paralela y perpendicular a la velocidad  $\vec{v}$ , respectivamente) son [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$F_{z'}(z', \rho) = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_0(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \sin(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ \left. + \cos(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\}, \quad (1.11)$$

$$F_\rho(z', \rho) = \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega J_1(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \\ \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \cos(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ \left. - \sin(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\}, \quad (1.12)$$

donde  $J_0(x)$  y  $J_1(x)$  son las funciones de Bessel de primera especie de orden 0 y 1, respectivamente [Abramowitz y Stegun 1972].

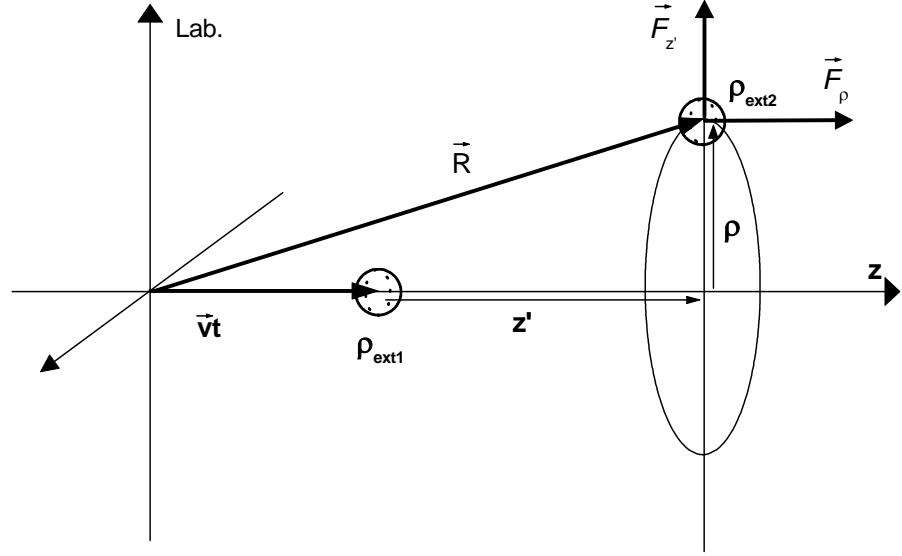


Figura 1.3: Componentes paralela  $z'$  y perpendicular  $\rho$  desde el centro de la densidad de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  al centro de la densidad de carga  $\rho_{\text{ext2}}$ . También se muestran las correspondientes componentes de la fuerza,  $\vec{F}_{z'}$  y  $\vec{F}_{\rho}$ . Los vectores  $\vec{v}t$  y  $\vec{R}$  son las posiciones en el sistema laboratorio de las densidades de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  y  $\rho_{\text{ext2}}$ , respectivamente.

En la figura 1.3 aparecen las distancias relativas de las densidades de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  y  $\rho_{\text{ext2}}$ , así como sus posiciones en el sistema de referencia laboratorio.

Hemos de tener en cuenta que las componentes de esta fuerza están expresadas siempre según la dirección de movimiento de la densidad de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  y, por lo tanto, no podemos expresar la fuerza que ejerce la densidad de carga  $\rho_{\text{ext2}}$  sobre la densidad de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  como menos la fuerza de  $\rho_{\text{ext1}}$  sobre  $\rho_{\text{ext2}}$ . Para hallarla tendremos que intercambiar  $\rho_{\text{ext2}}$  por  $\rho_{\text{ext1}}$  en las ecuaciones anteriores, además de calcular de nuevo las distancias paralela y perpendicular respecto al movimiento de  $\rho_{\text{ext2}}$ . También hemos de tener en cuenta que la fuerza sobre un proyectil depende, además de la dirección de la velocidad, del módulo  $v$  de la velocidad de la densidad de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  que genera el potencial inducido.

En la figura 1.4 se representan las fuerzas de vecindad entre dos protones ( $\rho_{\text{ext1}} = \rho_{\text{ext2}} = 1$ ), definidas por las ecuaciones (1.11) y (1.12), en función de las distancias  $z'$  y  $\rho$  para tres velocidades distintas,  $v = 0.7, 4.47$  y  $23.66$

a.u. (12.2, 499.1 y 13984.3 keV, respectivamente) en una lámina de carbono amorfo. Se ha representado en la posición (0, 0) el protón que produce el campo inducido en el sólido; el valor de las curvas indican la fuerza que actúa sobre otro protón que estuviera situado en las coordenadas  $(z', \rho)$ .

Estas fuerzas de vecindad presentan un comportamiento oscilatorio delante y detrás de la posición del ion que crea el campo, así como en la dirección perpendicular al movimiento. Las oscilaciones traseras son mucho más importantes que las delanteras. Estas oscilaciones quedan amortiguadas debido a las características de la función de pérdida energética (ELF). Por otra parte, las fuerzas de vecindad decaen transversalmente de forma casi exponencial. La extensión espacial de estas fuerzas oscilantes depende notablemente de la velocidad  $v$  del proyectil que genera la fuerza.

Es evidente entonces que una partícula vecina experimentará una fuerza de vecindad frenante o acelerante según sus coordenadas  $(z', \rho)$  respecto a la posición y velocidad de la partícula que genera el campo.

### 1.2.2. Pérdida-captura electrónica

Otro efecto de vecindad de origen electrónico es la influencia que tienen los iones que viajan juntos sobre los estados de carga de sus acompañantes. Los estados de carga de los fragmentos moleculares difieren de cuando los iones viajan solos [Maor *et al.* 1985, de Castro Faria *et al.* 1986b, Heredia-Avalos *et al.* 2001]. Para tiempos de tránsito pequeños, los iones (normalmente cargados positivamente) están todavía muy juntos y se produce un incremento en la captura electrónica, mientras que para tiempos de tránsito mayores ya están más separados y se vuelve a unos valores de captura electrónica típicos de iones aislados. El incremento en la fracción del estado de carga neutro del ion se debe a que la energía potencial del electrón ligado del átomo de hidrógeno se reduce por la proximidad de los iones vecinos, por lo que este electrón queda aún más ligado.

Por ejemplo, en la figura 1.5 se aprecia que la fracción de neutros para protones disociados de una molécula  $\text{H}_2^+$  que incide sobre una lámina de carbono amorfo con una energía comprendida entre 0.5 y 0.9 MeV/amu tiene un máximo a los 4 fs de tiempo de tránsito, con un valor 1.45 veces el de la fracción de neutros para protones que viajan solos [de Castro Faria *et al.* 1986b].

En los capítulos 3 y 4 del tránsito de iones  $\text{H}_2^+$  y  $\text{H}_3^+$ , respectivamente, a través de láminas delgadas vamos a tomar como referencia un valor pró-

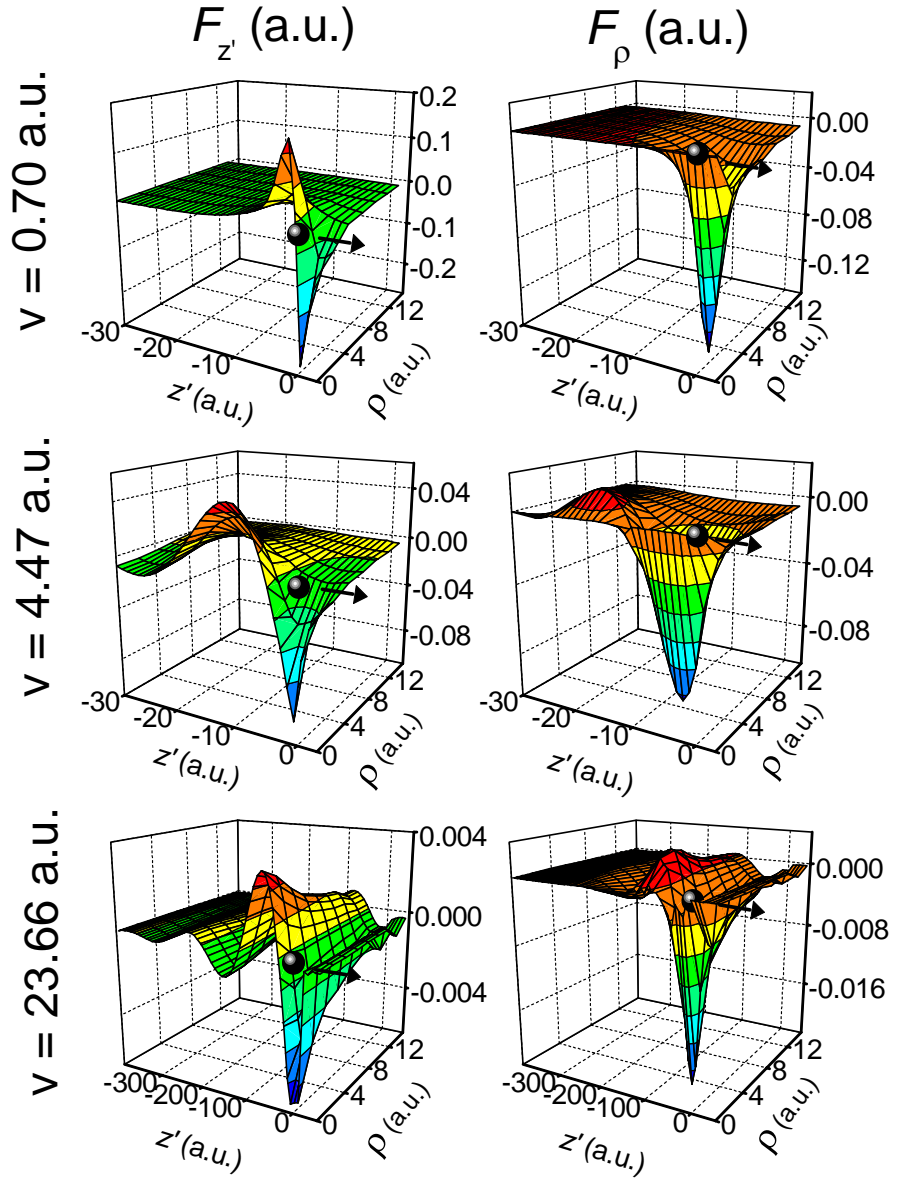


Figura 1.4: Fuerzas de vecindad paralela y perpendicular entre dos protones en carbono amorfo en función de las distancias  $z'$  y  $\rho$ , según las ecuaciones (1.11) y (1.12). Se dibujan las fuerzas para tres velocidades distintas:  $v = 0.7$ ,  $4.47$  y  $23.66$  a.u. (12.2, 499.1 y 13984.3 keV, respectivamente).



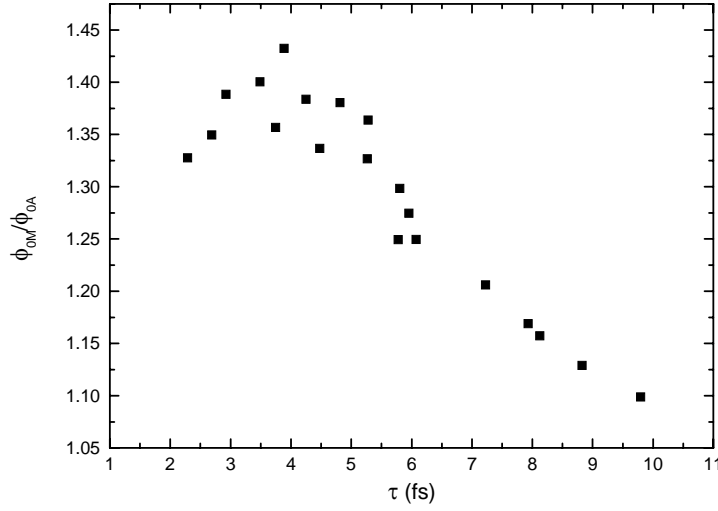


Figura 1.5: Valores experimentales del cociente entre la fracción de neutros obtenida con haces de moléculas  $\text{H}_2^+$  y haces atómicos,  $\phi_{0M}/\phi_{0A}$ , en función del tiempo de tránsito a través de una lámina de carbono para unas energías incidentes comprendidas entre 0.5 y 0.9 MeV/amu [de Castro Faria *et al.* 1986b].

ximo al de la probabilidad del estado de carga del protón aislado para después hallar numéricamente a través de nuestro programa de simulación la probabilidad del estado de carga del protón acompañado por los fragmentos resultantes de la misma disociación molecular.

Más adelante en el capítulo 5, sobre el tránsito de iones de hidrógeno mayores,  $\text{H}_n^+$ , iremos más allá e implementaremos en nuestro programa un modelo analítico para el cálculo de la probabilidad del estado de carga neutro del protón, cuando está rodeado de  $n - 1$  protones vecinos.

### 1.2.3. Explosión coulombiana

Las fuerzas coulombianas entre los iones disociados de un agregado de hidrógeno son de repulsión, ya que los iones disociados quedan cargados positivamente después de que la molécula pierda los electrones de ligadura. Esta repulsión hace que la distancia entre iones vaya aumentando con el tiempo, y consecuentemente va a hacer que las otras interacciones que dependan de la distancia relativa entre iones varíen notablemente a lo largo del recorrido del

proyectil. Además, esta repulsión va a hacer que el proyectil se desvíe de su trayectoria inicial, mucho más que en el caso de que haya sólo interacciones nucleares.

Es también sabido que estos iones disociados cuando viajan por el medio capturan y pierden electrones constantemente [Echenique *et al.* 1990], neutralizándose en ciertos momentos. Consideraremos a los fragmentos como iones puntuales, por lo que si uno de estos iones se neutraliza, la repulsión coulombiana será nula.

Un ejemplo es el caso de los fragmentos disociados de la molécula de  $H_2^+$ , o protones, que veremos en el capítulo 3. Cuando estos protones capturan electrones quedan como  $H^0$  o  $H^-$ ; la probabilidad de capturar un segundo electrón es muy pequeña en el rango de energía que estudiaremos, por lo que despreciaríamos el caso de  $H^-$ , que introduciría un efecto de atracción coulombiana cuando el otro fragmento fuera un  $H^+$ . Por otro lado, sí que estudiaremos el estado de carga  $H^0$  que anulará toda interacción coulombiana sea cual sea su ion acompañante.

También consideraremos que los iones viajan por el vacío con el mismo estado de carga con el que salen de la lámina. Es decir, después de abandonar la superficie posterior de la lámina todavía puede haber explosión coulombiana si los iones que viajan juntos tienen estados de carga positivo ambos.



## Capítulo 2

# Métodos de simulación

En el capítulo 1 se han descrito los tipos de interacción que se producen cuando un proyectil molecular viaja a través de un medio material. En este capítulo vamos a explicar cómo implementamos en nuestro programa de simulación las interacciones analizadas en ese capítulo.

Muchas de las interacciones discutidas en el capítulo anterior dependen de la posición y la velocidad relativa entre los fragmentos que viajan juntos por el interior de la lámina, después de la disociación del proyectil molecular. La posición y la velocidad relativa de los fragmentos cambian a medida que éstos avanzan en su recorrido, a causa de las interacciones que van experimentando.

La evolución de la posición y la velocidad de cada fragmento depende notablemente de su posición inicial relativa a los otros fragmentos. No sólo depende del módulo de esta posición inicial relativa, sino que también depende su dirección. Esto es así porque el problema del movimiento correlacionado de fragmentos que viajan juntos a través de un material tiene simetría cilíndrica debido a las fuerzas de vecindad que se ejercen mutuamente. Las fuerzas de vecindad dependen de las componentes perpendicular y paralela de la posición relativa respecto a la velocidad del haz (sección 1.2.1).

En la mayoría de experimentos no hay una orientación inicial privilegiada de la molécula, sino que las moléculas llegan a la lámina con una orientación al azar. Las direcciones de las posiciones relativas entre los fragmentos disociados dependerán de la orientación inicial de la molécula, por lo que es conveniente, en primer lugar, establecer en nuestro programa de simulación un método para que la orientación inicial de la molécula sea aleatoria respecto a la dirección del haz, al igual que en los experimentos.

Después intentaremos resolver el problema de la evolución de las posiciones y velocidades de los fragmentos basándonos en un código de dinámica molecular. En este código se sigue la trayectoria de cada proyectil paso a paso, estudiando casi instantáneamente todas las interacciones que sufren los fragmentos. Para el caso particular de las colisiones con los núcleos del material utilizaremos un sorteo tipo Monte Carlo según la teoría clásica de la dispersión nuclear.

Por último, introduciremos un método asintótico para la explosión coulombiana en el vacío de dos fragmentos; este procedimiento ahorrará un gran tiempo de cálculo para este caso específico.

## 2.1. Orientación inicial de los iones moleculares

Como hemos dicho en la introducción de este capítulo, en la mayoría de experimentos no hay una orientación inicial privilegiada de la molécula, sino que las moléculas llegan a la lámina con una orientación al azar, por lo que es necesario establecer en nuestro programa de simulación un método para que la orientación inicial de cada molécula sea aleatoria, al igual que sucede en los experimentos.

Hemos conseguido que la orientación aleatoria inicial de la molécula esté uniformemente distribuida en la esfera de direcciones. Para ello utilizaremos la transformación inversa de los ángulos de Euler [Goldstein 1977]. Se puede efectuar la transformación de un sistema cartesiano dado en otro (transformación directa) mediante tres rotaciones sucesivas determinadas. Los ángulos de Euler corresponden precisamente a estas rotaciones.

El proceso se inicia haciendo girar el sistema cartesiano original  $(xyz)$  un ángulo  $\phi$  en sentido directo (contrario a las agujas del reloj) alrededor del eje  $z$ ; esto da lugar a un sistema  $\xi\eta\zeta$ . En un segundo paso se hace girar este nuevo sistema en sentido directo un ángulo  $\theta$  alrededor del eje  $\xi$ , obteniendo el sistema intermedio  $\xi'\eta'\zeta'$ . El eje  $\xi'$  es la intersección de los planos  $xy$  y  $\xi'\eta'$ , y se denomina línea de nodos. Finalmente, se giran los ejes  $\xi'\eta'\zeta'$  en sentido directo un ángulo  $\psi$  alrededor del eje  $\zeta'$  obteniéndose el sistema final  $x'y'z'$ . En la figura 2.1 se ilustran las diversas etapas de esta transformación.

Así pues, el producto de los tres giros caracterizados por los tres ángulos de Euler  $\phi$ ,  $\theta$  y  $\psi$  determinan por completo la orientación del sistema  $x'y'z'$

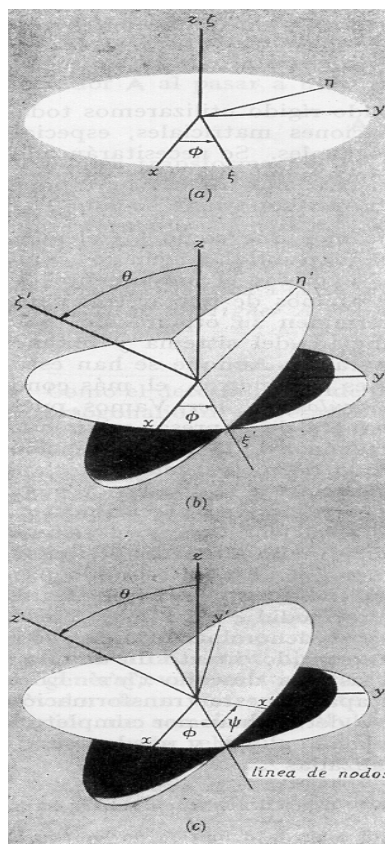


Figura 2.1: Giros que definen los ángulos de Euler  $\phi$ ,  $\theta$  y  $\psi$  [Goldstein 1977].

con relación al  $xyz$  (transformación directa), mientras el producto inverso de ellos transforman unas coordenadas cualesquiera a un sistema de ejes del espacio (transformación inversa). Es esta última transformación la que nos importa, por lo que la transformación inversa de los ángulos de Euler nos definirá la orientación de la molécula.

Pero a nosotros nos interesa una orientación aleatoria de la molécula, por lo que hemos de sortear los tres ángulos de Euler de la siguiente forma: sorteamos aleatoriamente el primer ángulo de rotación de Euler ( $\phi$ ) entre 0 y  $2\pi$ ; sorteamos aleatoriamente el coseno del segundo ángulo de Euler ( $\cos \theta$ ) entre  $-1$  y  $1$ ; y sorteamos aleatoriamente el tercer ángulo de Euler ( $\psi$ ) entre 0 y  $2\pi$ . El resultado es una molécula que está orientada aleatoriamente, sin tener ninguna orientación concreta privilegiada.

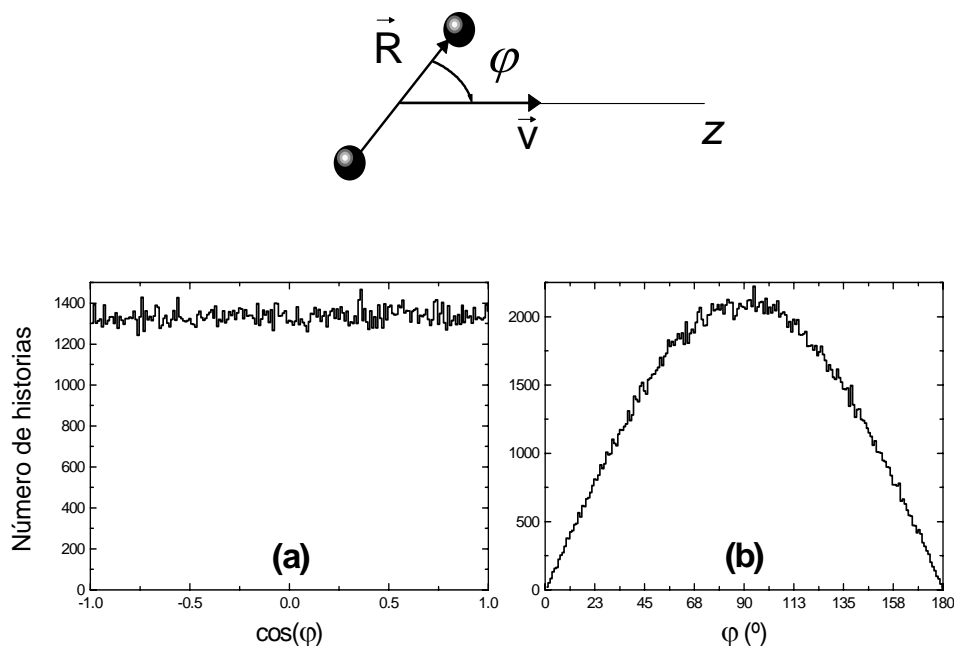


Figura 2.2: Esquema del ángulo polar  $\varphi$  entre el vector internuclear  $\vec{R}$  y la velocidad  $\vec{v}$  de la molécula de  $\text{H}_2^+$ . (a) Distribución uniforme de  $\cos \varphi$  entre 1 y  $-1$ . (b) Distribución tipo coseno de  $\varphi$  entre 0 y  $180^\circ$ .

Podemos comprobar si el sorteo de los ángulos de Euler es correcto, por ejemplo para el caso de la molécula de  $\text{H}_2^+$ . Si el sorteo es correcto, el valor del coseno del ángulo polar  $\varphi$  que forma el vector internuclear  $\vec{R}$  con la dirección de movimiento de la molécula (figura 2.2) ha de estar uniformemente distribuido entre  $-1$  y  $1$ .

Si representamos el número de historias en función del coseno del ángulo polar obtenemos una distribución uniforme, mientras que si representamos el número de historias en función del ángulo polar se obtiene una distribución coseno, tal como se puede apreciar en las figuras 2.2a y 2.2b, respectivamente. Por otra parte, el sorteo del ángulo azimutal (comprendido entre 0 y  $2\pi$ ) da lugar a una distribución uniforme, como corresponde al problema analizado, que tiene simetría cilíndrica a lo largo del eje definido por la dirección de movimiento del haz. Esto nos confirma que el sorteo de la orientación molecular es correcto y lo realizaremos mediante la subrutina “Eulergeo” del programa principal (apéndice B).

## 2.2. Dinámica molecular del movimiento de iones

La dinámica molecular es un método de simulación numérica que permite seguir la evolución de un sistema de partículas a partir de las ecuaciones de Newton:

$$\vec{F}_i = \frac{d\vec{p}_i}{dt}, \quad (2.1)$$

$$\vec{p}_i = m_i \frac{d\vec{r}_i}{dt}. \quad (2.2)$$

Si conocemos las posiciones y las velocidades de cada partícula  $i$  en un tiempo  $t$ , y sabemos qué fuerzas actúan sobre el sistema, obtendremos las posiciones y las velocidades en un instante inmediatamente posterior,  $t + \Delta t$ .

Hay muchos algoritmos que se pueden utilizar, pero estos tienen que tener ciertas características fundamentales, tales como la rapidez, el uso de poca memoria, que permita escoger un incremento de tiempo  $\Delta t$  en un rango amplio y que se satisfagan la conservación de la energía-momento y la reversibilidad en el tiempo. Nuestro grupo de investigación, tras probar diversos algoritmos y incrementos de tiempo  $\Delta t$ , optó por el algoritmo de Verlet en su variante “velocidad” [Allen y Tildesley 1987]:

$$\vec{r}(t + \Delta t) = \vec{r}(t) + \Delta t \vec{v}(t) + \frac{1}{2}(\Delta t)^2 \vec{a}(t), \quad (2.3)$$

$$\vec{v}(t + \Delta t) = \vec{v}(t) + [\vec{a}(t) + \vec{a}(t + \Delta t)]\Delta t/2, \quad (2.4)$$

con un incremento de tiempo  $\Delta t \simeq (v)^{-1}$  a.u. La aceleración  $\vec{a}_i(t)$  que actúa sobre cada partícula de masa  $m_i$  se obtiene a partir de la fuerza que experimenta, mediante la expresión  $\vec{a}_i = \vec{F}_i/m_i$ .

Para obtener la fuerza de frenado electrónico de una forma casi instantánea, partimos de los datos del poder de frenado y del straggling del material que constituye la lámina, calculados a priori para un rango de velocidades próximo a la velocidad inicial del proyectil. El resultado final del poder de frenado se obtendrá a partir del sorteo de una distribución gaussiana cuyo valor medio  $\bar{S}_p$  es el poder de frenado (tabulado a partir de la ecuación (1.1) para esa velocidad instantánea) y cuya varianza es  $\Lambda^2 = \Omega^2/\Delta z$  tal que (figura 1.1):

$$\mathcal{P}(S_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sqrt{\Omega^2/\Delta z}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \frac{(S_p - \bar{S}_p)^2}{\Omega^2/\Delta z} \right], \quad (2.5)$$



donde  $\Omega^2$  es el straggling electrónico (tabulado a partir de la ecuación (1.3)), y  $\Delta z = v \Delta t$ , siendo  $v$  la velocidad instantánea del proyectil en el intervalo de tiempo  $\Delta t$ .

Según el método Box-Muller [Press *et al.* 1992], a partir de dos números aleatorios,  $x_1$  y  $x_2$ , distribuidos uniformemente entre 0 y 1, podemos generar dos números aleatorios,  $\omega_1$  y  $\omega_2$ , dentro de una distribución gaussiana de valor medio 0 y de varianza  $\Lambda^2 = \Omega^2/\Delta z$ , tal que:

$$\omega_1 = \sqrt{\Omega^2/\Delta z} \sqrt{-2 \ln x_1} \cos(2\pi x_2), \quad (2.6)$$

$$\omega_2 = \sqrt{\Omega^2/\Delta z} \sqrt{-2 \ln x_1} \sin(2\pi x_2). \quad (2.7)$$

Por lo que podemos tomar cualquiera de los dos números aleatorios anteriores,  $\omega_i$  (tomamos uno de los dos y nos quedamos con el otro para posteriores cálculos del valor del autofrenado), para calcular finalmente el valor del poder de frenado:

$$S_p = \bar{S}_p + \omega_i. \quad (2.8)$$

Este valor se usará junto a los valores de las otras fuerzas de vecindad y de repulsión coulombiana en el algoritmo de dinámica molecular implementado en la subrutina “Step3” del programa principal (apéndice B).

La fuerza de vecindad, al igual que la de frenado, la calculamos a priori, ya que el programa de simulación tardaría mucho tiempo en calcular las integrales especificadas en las ecuaciones (1.11) y (1.12), para cada instante de tiempo. Por tanto, en cada intervalo temporal obtendremos la fuerza de vecindad a partir de un conjunto de valores tabulados que han sido calculados con anterioridad.

### 2.3. Método Monte Carlo para la dispersión nuclear

Para tener en cuenta la dispersión nuclear de los proyectiles causada por la interacción con los átomos del blanco, nos basaremos en el modelo de colisión binaria descrito por Moller *et al.* [1975] y en el modelo de simulación Monte Carlo desarrollado por Zajfman *et al.* [1990]. Estos modelos están implementados en la subrutina “Scattering” del programa principal (apéndice B).

Utilizaremos unidades reducidas, por lo que la energía  $E$  del proyectil se escribe como:

$$\varepsilon = \frac{aM_n}{ZZ_n(M + M_n)}E, \quad (2.9)$$

donde  $Z$  y  $M$  son el número atómico y la masa del proyectil,  $Z_n$  y  $M_n$  son los del núcleo atómico con el que colisiona, y  $a$  es la distancia de apantallamiento universal, dada por la ecuación (1.9).

La sección eficaz total es  $\sigma_{\text{tot}} = \pi r_0^2$ , suponiendo que el núcleo blanco es un centro de dispersión efectivo dentro de un volumen esférico de radio igual a la mitad de la distancia entre átomos vecinos  $r_0 = \mathcal{N}^{-1/3}/2$ , donde  $\mathcal{N}$  es el número de átomos del blanco por unidad de volumen. En unidades reducidas la sección eficaz total es:

$$J_{\text{tot}} = \frac{\sigma_{\text{tot}}}{\pi a^2} = \frac{r_0^2}{a^2}. \quad (2.10)$$

El camino  $l$  recorrido por el proyectil entre dos colisiones nucleares consecutivas se escribe en unidades reducidas como:

$$\xi = \frac{4\pi a^2 \mu \mathcal{N}}{M + M_n} l, \quad (2.11)$$

donde  $\mu = MM_n/(M + M_n)$  es la masa reducida del sistema de partículas que interaccionan (proyectil y blanco). Determinaremos esta distancia por el método Monte Carlo, ya que la colisión nuclear es un proceso estadístico debido a la distribución homogénea de los átomos de material. Expresaremos la probabilidad de colisión como:

$$P_{\text{col}} = 1 - \exp(-\mathcal{N}\sigma_{\text{tot}}l). \quad (2.12)$$

Sustituyendo en la exponencial los valores de  $l$  y  $\sigma_{\text{tot}}$ , deducidos de las ecuaciones (2.10) y (2.11), obtenemos el recorrido (en unidades reducidas) que realiza el proyectil entre dos colisiones sucesivas:

$$\xi = \frac{-4\mu}{M + M_n} \frac{\ln(1 - P_{\text{col}})}{J_{\text{tot}}}. \quad (2.13)$$

Como el valor de la probabilidad de colisión  $P_{\text{col}}$  está uniformemente distribuido entre 0 y 1, podemos asociarlo a un número aleatorio  $k_1$

$$\xi = \frac{-4\mu}{M + M_n} \frac{\ln(1 - k_1)}{J_{\text{tot}}}. \quad (2.14)$$

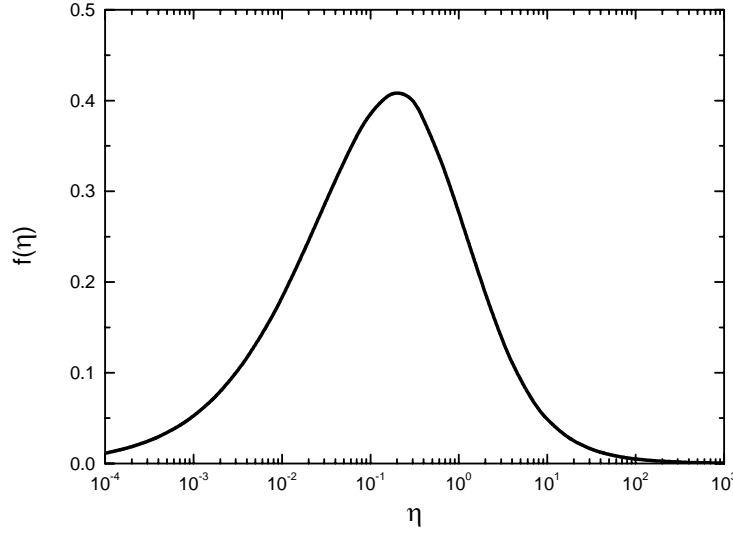


Figura 2.3: Función universal del poder de frenado nuclear  $f(\eta)$  que aparece en la ecuación (2.15) [Ziegler *et al.* 1985].

Por otra parte, la sección eficaz diferencial en unidades reducidas es:

$$\frac{dJ}{d\eta} = \frac{f(\eta)}{\eta^2}, \quad (2.15)$$

donde  $\eta = \varepsilon \sin(\theta/2)$  se denomina ángulo de dispersión reducido. El ángulo  $\eta$  está relacionado con el ángulo polar de dispersión  $\theta$  en el sistema centro de masa, ecuación (1.7) y con la energía reducida  $\varepsilon$ , ecuación (2.9). La función  $f(\eta)$  es la función universal del poder de frenado nuclear en unidades reducidas [Ziegler *et al.* 1985] dibujada en la figura 2.3. Podemos darnos cuenta que  $\eta_{\text{máx}} = \varepsilon$  y corresponde al ángulo de dispersión máximo  $\theta_{\text{máx}} = \pi$ , i.e. el proyectil invierte el sentido de su movimiento. Integrando la ecuación (2.15) desde un límite inferior fijo  $\eta_0$ , suficientemente pequeño, hasta  $\eta$  obtenemos

$$\int_{\eta_0}^{\eta} \frac{dJ}{d\eta'} d\eta' = \int_{\eta_0}^{\eta} \frac{f(\eta')}{\eta'^2} d\eta' = J(\eta) - J(\eta_0). \quad (2.16)$$

Con el objetivo de facilitar posteriores cálculos, construimos una tabla de valores de  $J(\eta) - J(\eta_0)$  en función de  $\eta$ , evaluando numéricamente la integral anterior considerando  $\eta_0 = 10^{-4}$ . Entonces  $J(\eta)$  puede ser calculada de la

forma

$$J(\eta) = J(\eta_0) + \int_{\eta_0}^{\eta} \frac{f(\eta')}{\eta'^2} d\eta' \quad (2.17)$$

si sabemos  $J(\eta_0)$ . Sin embargo, como veremos a continuación, no va a ser necesario conocer  $J(\eta_0)$  para nuestro método.

La sección eficaz total en unidades reducidas  $J_{\text{tot}}$ , es la diferencia entre la sección eficaz para el valor máximo del ángulo de dispersión reducido  $J(\eta_{\text{máx}})$  y la sección eficaz para el valor mínimo del ángulo de dispersión reducido  $J(\eta_{\text{mín}})$ . Como el valor máximo del ángulo de dispersión reducido es  $\eta_{\text{máx}} = \varepsilon$ , tenemos

$$J_{\text{tot}} = J(\varepsilon) - J(\eta_{\text{mín}}) = \int_{\eta_{\text{mín}}}^{\varepsilon} \frac{dJ}{d\eta'} d\eta', \quad (2.18)$$

por lo que si sabemos  $J_{\text{tot}}$ , ecuación (2.10), y  $\varepsilon$ , ecuación (2.9), podemos determinar el ángulo de dispersión mínimo  $\eta_{\text{mín}}$ . Como vemos,  $J(\varepsilon)$  y  $J(\eta_{\text{mín}})$  dependen de  $J(\eta_0)$  pero su diferencia  $J(\varepsilon) - J(\eta_{\text{mín}})$  no, por lo que no será necesario conocer  $J(\eta_0)$ .

Como la sección eficaz para cualquier ángulo de dispersión  $J(\eta)$ , va a ser menor que la sección eficaz para el ángulo de dispersión máximo  $J(\varepsilon)$ , tenemos

$$0 \leq \frac{J(\eta) - J(\eta_{\text{mín}})}{J(\varepsilon) - J(\eta_{\text{mín}})} = \frac{J(\eta) - J(\eta_{\text{mín}})}{J_{\text{tot}}} \leq 1, \quad (2.19)$$

uniformemente distribuido, por lo que podemos igualarlo a un número aleatorio entre 0 y 1

$$k_2 = \frac{J(\eta) - J(\eta_{\text{mín}})}{J_{\text{tot}}} = \frac{J(\eta) - J(\varepsilon) + J_{\text{tot}}}{J_{\text{tot}}}. \quad (2.20)$$

Entonces:

$$J(\eta) = J(\varepsilon) + (k_2 - 1) J_{\text{tot}}, \quad (2.21)$$

o lo que es lo mismo

$$J(\eta) - J(\eta_0) = J(\varepsilon) - J(\eta_0) + (k_2 - 1) J_{\text{tot}}. \quad (2.22)$$

Para determinar el valor de  $\eta$ , calculamos  $J_{\text{tot}}$  mediante la ecuación (2.10),  $\varepsilon$  mediante la ecuación (2.9) y sorteamos un número aleatorio  $k_2$ . Obtenemos el valor de  $J(\varepsilon) - J(\eta_0)$  interpolando en la tabla de valores antes construida. Según la ecuación (2.22) tenemos el valor  $J(\eta) - J(\eta_0)$ , sólo hace falta interpolar en la tabla otra vez para obtener el valor de  $\eta$ .

Una vez hallado el valor de  $\eta$ , o lo que lo mismo el ángulo polar de dispersión  $\theta$  en el sistema centro de masa, podemos obtener el ángulo de dispersión  $\varphi$  en el sistema laboratorio [Zajfman *et al.* 1990]:

$$\cos \varphi = \left(1 - 2 \frac{\mu \eta^2}{M \varepsilon^2}\right) \left(1 - \frac{4\mu}{M + M_n} \frac{\eta^2}{\varepsilon^2}\right)^{-1/2}. \quad (2.23)$$

Es importante mencionar que una vez obtenido el ángulo polar de dispersión  $\theta$  en el sistema centro de masa, es fácil evaluar la energía perdida por el proyectil en la colisión nuclear a través de la ecuación (1.10)

El ángulo azimutal  $\psi$  en el sistema laboratorio tras cada colisión, lo obtenemos de un sorteo aleatorio uniforme entre 0 y  $2\pi$ :

$$\psi = 2\pi k_3, \quad (2.24)$$

donde  $k_3$  es otro número aleatorio uniformemente distribuido entre 0 y 1.

En el sistema laboratorio, si la dirección inicial del proyectil antes de una colisión viene definida por los ángulos polar y azimutal  $\Theta$  y  $\Psi$ , después de haber sufrido una colisión nuclear de ángulos  $\varphi$  y  $\psi$ , la dirección final vendrá definida por los ángulos  $\Theta'$  y  $\Psi'$  tal que:

$$\cos \Theta' = -\sin \varphi \cos \psi \sin \Theta + \cos \varphi \cos \Theta, \quad (2.25)$$

$$\begin{aligned} \cos \Psi' &= \frac{1}{\sin \Theta'} (\sin \varphi \cos \psi \cos \Theta \cos \Psi \\ &\quad - \sin \varphi \sin \psi \sin \Psi + \cos \varphi \sin \Theta \cos \Psi), \end{aligned} \quad (2.26)$$

$$\begin{aligned} \sin \Psi' &= \frac{1}{\sin \Theta'} (\sin \varphi \cos \psi \cos \Theta \sin \Psi \\ &\quad + \sin \varphi \sin \psi \cos \Psi + \cos \varphi \sin \Theta \sin \Psi). \end{aligned} \quad (2.27)$$

## 2.4. Método asintótico para la explosión coulombiana

En este apartado vamos a estudiar un método analítico para estudiar la explosión coulombiana pura, es decir sin que haya ningún otro tipo de interacción, entre dos iones (este método lo podemos encontrar implementado

en subrutina “Vacío” del programa principal, apéndice B). El problema es más fácil de resolver en el sistema centro de masa, por lo que primero lo resolveremos en el sistema centro de masa y después lo pasaremos al sistema laboratorio.

Si tenemos dos iones de masa  $m_1$  y  $m_2$ , con posiciones  $\vec{r}_1'$  y  $\vec{r}_2'$ , y velocidades  $\vec{v}_1'$  y  $\vec{v}_2'$  respectivamente, en el sistema centro de masa, podemos definir la posición relativa, o internuclear, y la velocidad relativa de la forma:

$$\vec{r} = \vec{r}_2' - \vec{r}_1', \quad (2.28)$$

$$\vec{v}_{\text{rel}} = \vec{v}_2' - \vec{v}_1' = \left(1 - \frac{m_2}{m_1}\right) \vec{v}_2', \quad (2.29)$$

ya que  $\vec{v}_1' = -\frac{m_2}{m_1}\vec{v}_2'$  en el sistema centro de masa.

La energía en el sistema centro de masa, será:

$$E = \frac{1}{2}\mu v_{\text{rel}}^2 + V(r), \quad (2.30)$$

donde  $\mu$  es la masa reducida y  $V(r)$  es el potencial coulombiano. Podemos escribir la velocidad relativa en función de sus componentes  $v_r$  y  $v_\theta$ , paralela y perpendicular a  $\vec{r}$ , respectivamente:

$$v_{\text{rel}}^2 = v_r^2 + v_\theta^2 = v_r^2 + \frac{L^2}{\mu^2 r^2}, \quad (2.31)$$

siendo  $L$  el módulo del momento angular  $\vec{L}$  del sistema de las dos partículas.

Cuando  $r \rightarrow \infty$  el potencial coulombiano  $V(r)$  y la componente perpendicular de la velocidad  $v_\theta$  se hacen cero. El movimiento se produce en la asíntota de la explosión coulombiana, con una velocidad paralela al vector internuclear,  $v_{r,\text{as}}$ :

$$v_{r,\text{as}}^2 = v_{r \rightarrow \infty}^2. \quad (2.32)$$

Para obtener el valor de esta velocidad asintótica usamos la conservación de energía, igualando a la energía inicial:

$$v_{r,\text{as}}^2 = v_{r,0}^2 + \frac{L_0^2}{\mu^2 r_0^2} + \frac{2V(r_0)}{\mu}, \quad (2.33)$$

donde  $v_{r,0}$ ,  $L_0$  y  $r_0$  son los módulos de la velocidad relativa, del momento angular relativo y de la posición relativa iniciales, respectivamente. Una vez

obtenida  $v_{r,as}$  podemos hallar a partir de la ecuación (2.29) el módulo de las velocidades asintóticas  $v_{1as}$  y  $v_{2as}$  en el sistema laboratorio.

El ángulo asintótico de la dirección de movimiento se puede calcular de diversas maneras, pero una forma rápida implementada en nuestra simulación se obtiene a partir de la conservación del vector de Runge-Lenz, definido como [Englefield 1972]:

$$\vec{A} = \vec{v}_{rel} \times \vec{L} + Z_1 Z_2 \hat{r}, \quad (2.34)$$

donde  $Z_1$  y  $Z_2$  son las cargas de los dos iones y  $\hat{r}$  es el vector unitario en la dirección relativa.

El vector de Runge-Lenz en componentes paralela y perpendicular a  $\vec{r}$  es:

$$\vec{A} = A_\theta \hat{\theta} + A_r \hat{r} = (-L v_r) \hat{\theta} + \left( \frac{L^2}{\mu r} + Z_1 Z_2 \right) \hat{r}. \quad (2.35)$$

La componente paralela del vector de Runge-Lenz en el infinito es  $A_r(r \rightarrow \infty) = Z_1 Z_2$ , ya que el término  $L^2/(\mu r)$  se hace cero, y la componente perpendicular es  $A_\theta(r \rightarrow \infty) = -L v_{r \rightarrow \infty}$ . Para saber el ángulo que hay entre el vector constante de Runge-Lenz y la dirección final del vector internuclear hacemos:

$$\phi' = \arccos \left( \frac{A_r(r \rightarrow \infty)}{A} \right), \quad (2.36)$$

donde  $A$  es el módulo del vector de Runge-Lenz (figura 2.4) que calculamos a partir de la situación inicial. Igualmente, podemos hallar el ángulo entre  $\vec{A}$  y la dirección inicial del vector internuclear:

$$\phi = \arcsin \left( \frac{A_{\theta 0}}{A} \right), \quad (2.37)$$

donde  $A_{\theta 0}$  es la componente perpendicular del vector de Runge-Lenz respecto a la dirección inicial del vector internuclear.

Se puede demostrar [Zajfman *et al.* 1990] que el ángulo entre la dirección inicial y final es:

$$\Phi = \text{signo}(v_\theta) \arccos \left( \frac{A_r(r \rightarrow \infty)}{A} \right) + \arcsin \left( \frac{A_{\theta 0}}{A} \right). \quad (2.38)$$

Resumiendo, podemos hallar el módulo de la velocidad asintótica a partir de la conservación de energía, y el ángulo entre la dirección inicial y final a partir del vector de Runge-Lenz, es decir:

$$\vec{v}_{r,as} = v_{r,as} (\cos \Phi \hat{u}_{r,as} + \sin \Phi \hat{u}_{\theta,as}), \quad (2.39)$$

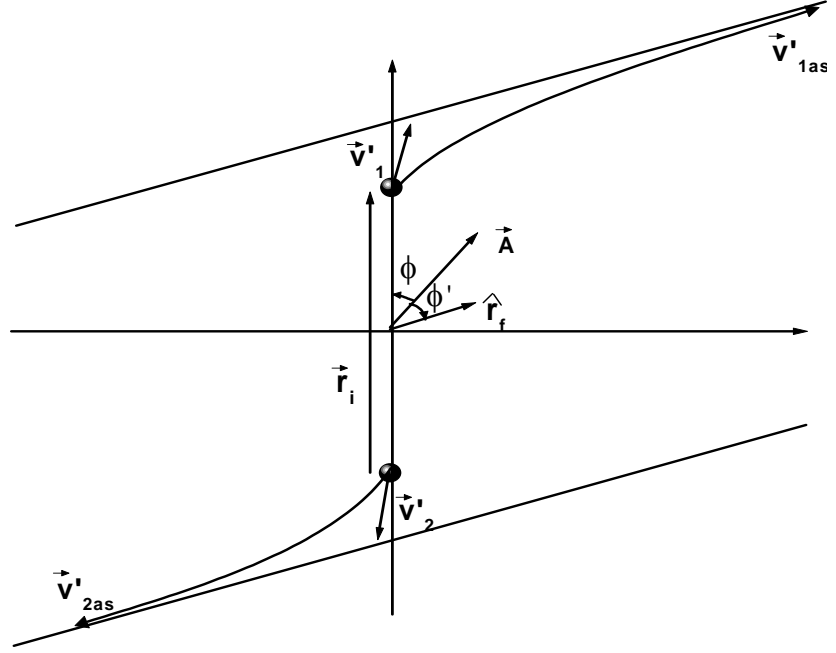


Figura 2.4: Esquema de los ángulos entre el vector internuclear  $\vec{r}$  y el vector constante de Runge-Lenz,  $\vec{A}$ , para la situación inicial y en el límite asintótico, en el sistema centro de masa.

donde  $\hat{u}_{r,as}$  y  $\hat{u}_{\theta,as}$  son los vectores unitarios paralelo y perpendicular, respectivamente, a la dirección internuclear inicial.

En la figura 2.5 se puede ver el espectro de energías, para todo ángulo, de protones disociados de una molécula de  $H_2^+$  que incide con una velocidad inicial de 4.47 a.u. (0.5 MeV/protón) sobre una lámina de carbono amorfo de espesor 198.5 a.u. Los diferentes tipos de líneas discontinuas indican los espectros simulados a distintas distancias después de salir de lámina. La línea continua indica el espectro obtenido empleando el método asintótico.

Vemos que para una distancia del orden de  $5 \times 10^4$  a.u. después de salir de la lámina tenemos el mismo resultado (aparte de la discrepancia estadística) que con la aproximación asintótica, esto quiere decir que los protones ya han dejado de repelerse y no va a haber más interacción entre ellos.

También podemos ver cómo cambia el vector internuclear  $\vec{r}$  entre iones en un tiempo  $t$  lo suficientemente grande para encontrarnos en el caso asintótico.



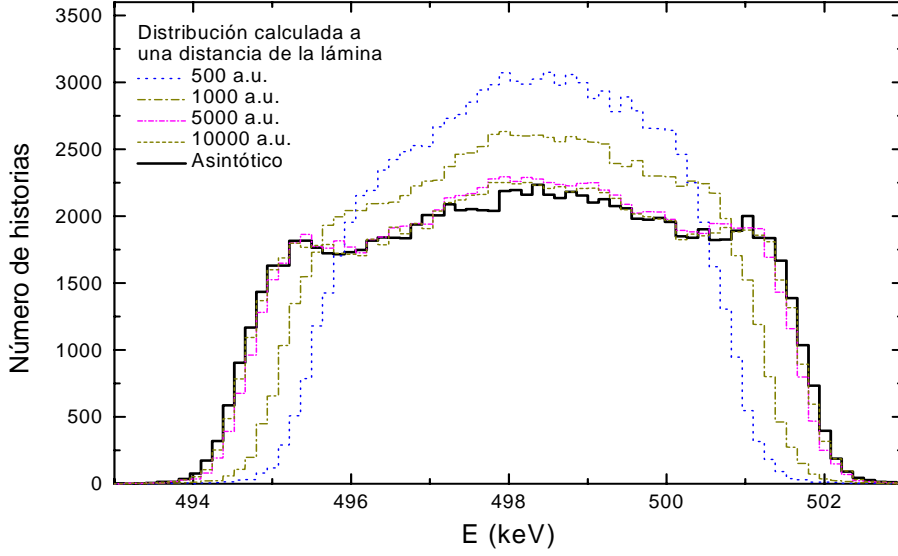


Figura 2.5: Espectro de energías de protones disociados de una molécula de  $\text{H}_2^+$  que incide con una velocidad inicial de 4.47 a.u. sobre una lámina de carbono de 198.5 a.u. de espesor. El espectro se ha calculado considerando todos los ángulos de salida. La distancia a la que se calcula la distribución varía para cada gráfica, tal como se indica en el recuadro.

La dirección del vector internuclear final es la de la velocidad asintótica que hemos hallado antes, por lo que lo único que nos queda por saber es su módulo. Éste vendrá dado como la solución a la ecuación diferencial siguiente:

$$\mu \frac{d^2 r}{dt^2} = \frac{Z_1 Z_2}{r^2}. \quad (2.40)$$

La solución depende en gran medida de la distancia inicial  $r_0$  y de la velocidad relativa inicial  $v_0$ , como se puede ver en las figuras 2.6a y 2.6b.

La ecuación diferencial (2.40) no tiene solución analítica para  $r$ , por lo que a un tiempo de viaje  $t$  dado, tendremos una función cuyos ceros son la

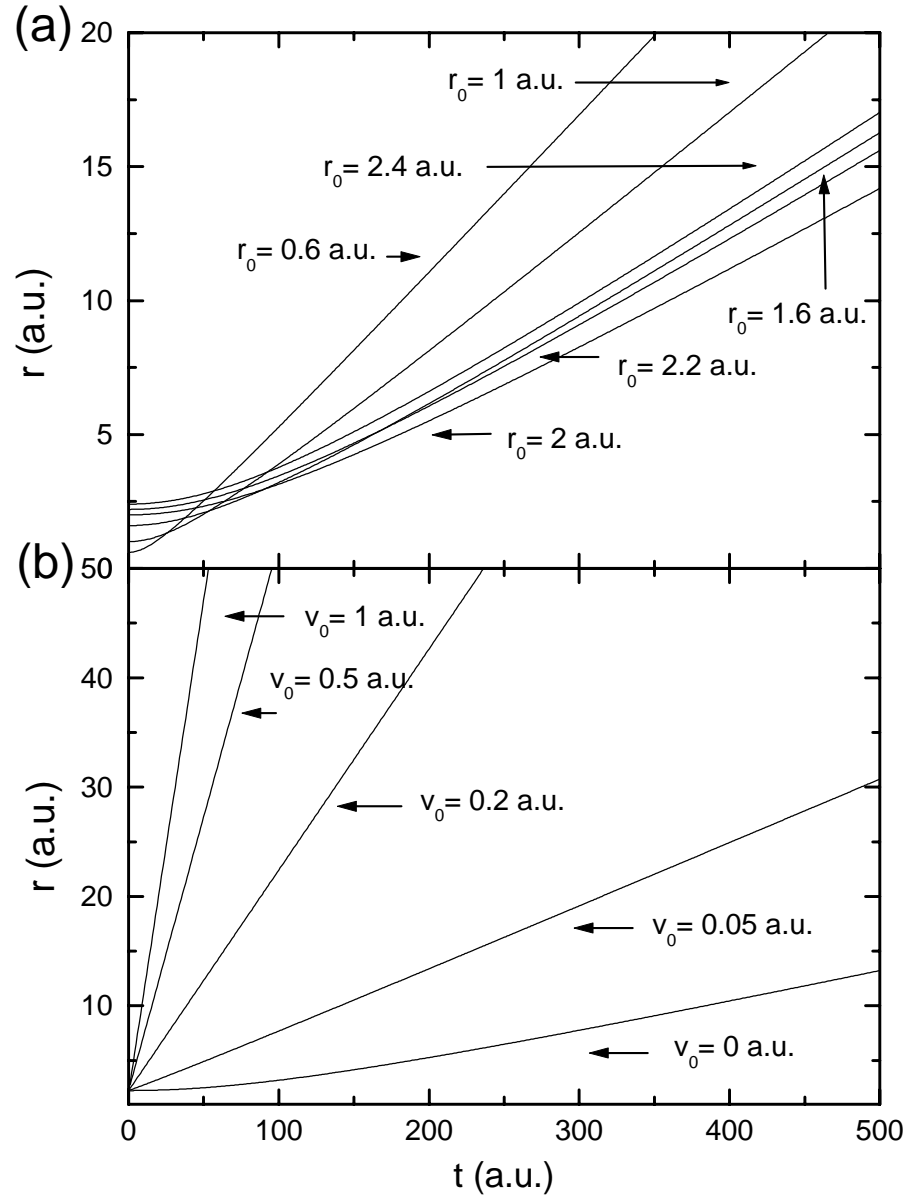


Figura 2.6: Separación internuclear  $r$  en función del tiempo, para una pareja de protones. (a) Cada línea corresponde a una distancia internuclear inicial diferente para una velocidad relativa inicial de  $v_0 = 0$  a.u. (b) Cada línea corresponde a una velocidad relativa inicial diferente para una distancia internuclear inicial de  $r_0 = 2.246$  a.u.

solución a nuestro problema:

$$f(r) = t - \frac{1}{p} \left[ \sqrt{r(p r - q)} - \sqrt{r_0(p r_0 - q)} \right] + \frac{q}{\sqrt{p}} \ln \left( \frac{p \sqrt{r} + \sqrt{p(p r - q)}}{p \sqrt{r_0} + \sqrt{p(p r_0 - q)}} \right) = 0 \quad (2.41)$$

donde

$$p = \frac{q}{r_0} + v_0^2 \quad (2.42)$$

y

$$q = \frac{2Z_1 Z_2}{\mu}. \quad (2.43)$$

La solución a la ecuación (2.41) no es analítica, por lo que podemos hacer una aproximación para el caso de un espaciado interlaminar suficientemente grande, con lo cual la distancia internuclear  $r$  ya será mucho más grande que la distancia inicial  $r_0$ ,  $r_{\text{as}} \gg r_0$ , y por lo tanto:

$$r_{\text{as}} \simeq \sqrt{p} t \quad (2.44)$$

Una vez obtenido el módulo, tenemos el vector internuclear completamente definido por:

$$\vec{r}_{\text{as}} = r_{\text{as}} (\cos \Phi \hat{u}_{r,\text{as}} + \sin \Phi \hat{u}_{\theta,\text{as}}). \quad (2.45)$$

## Capítulo 3

# Tránsito de iones $\text{H}_2^+$

El interés del estudio de la interacción de moléculas  $\text{H}_2^+$  con láminas delgadas se debe a que es el proyectil molecular más simple. La molécula de  $\text{H}_2^+$  está compuesta por un núcleo de dos protones separados por una distancia  $R$  y por un electrón de ligadura. Cuando la molécula interacciona con la lámina viaja un cierto tiempo sin disociarse hasta que pierde su electrón ligado, quedando dos protones con una cierta configuración espacial. Al tiempo transcurrido hasta que pierde su electrón de ligadura se le llama vida del ion molecular. Algunas veces, dependiendo de la velocidad inicial de la molécula y del espesor de la lámina, la molécula atraviesa la lámina sin disociarse, lo que se conoce con el nombre de transmisión original o simplemente transmisión. Pero lo normal es que la molécula salga de la lámina disociada en los iones que la forman, proceso al que llamaremos disociación. Finalmente estudiaremos el proceso de recombinación, que como la palabra indica consiste en la recombinación de los iones disociados para formar de nuevo la molécula original a la salida de la lámina.

En un primer apartado vamos a estudiar la geometría inicial de la molécula de  $\text{H}_2^+$ . La geometría inicial de la molécula puede estar relacionada directamente con la vida del ion molecular, además que es necesaria para calcular el frenado molecular del ion, ya que necesitamos saber el valor de la distancia internuclear y la orientación del vector internuclear cuando el ion se transmite por la lámina. También es importante estudiar la geometría inicial de la molécula para el caso de la disociación, ya que la interacción y la recombinación de los protones disociados de la molécula de  $\text{H}_2^+$  dependen de la distancia internuclear y de la orientación del eje internuclear respecto de la

dirección de movimiento del haz.

Mientras que la molécula se transmite sin disociarse, es decir como ion molecular, las interacciones de ésta con el material son diferentes a las que se producen cuando la molécula está disociada. Para saber cuál es el efecto de estas interacciones tenemos que saber cuánto tiempo pasa hasta que la molécula se disocia. Este primer estudio se hace en el apartado de vida media, mientras que en un posterior apartado se estudia el frenado electrónico del ion molecular. Una vez finalizado el estudio de la molécula original antes de disociarse, se analizarán los fragmentos disociados y su posterior proceso de recombinación para formar el ion  $\text{H}_2^+$ .

Al final del capítulo vamos a hacer especial hincapié en el estudio de las interacciones que sufren tanto los iones  $\text{H}_2^+$  como los  $\text{H}^+$  disociados; para ello compararemos los resultados obtenidos mediante nuestro programa de simulación con los correspondientes resultados experimentales. La mayoría de los resultados experimentales son espectros de energía, por lo que analizaremos estas interacciones a través de su efecto en estos espectros. Como los experimentos son realizados para un rango concreto de energías del haz de iones  $\text{H}_2^+$  incidente, dividiremos nuestro estudio según el rango de energías utilizado.

A partir del análisis de estos espectros de energía veremos que la pérdida de energía de los iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos es bastante menor que la del doble de un protón, y que la pérdida de energía de los iones  $\text{H}_2^+$  recombinados es igual a la del doble de un protón más unos pequeños efectos de vecindad, ya que supondremos que la recombinación se da en la superficie de salida de la lámina después de tener lugar un proceso de captura electrónica. Este hecho nos servirá para distinguir entre la transmisión y la recombinación molecular con sólo medir la energía perdida por las moléculas de  $\text{H}_2^+$  emergentes de la lámina.

### 3.1. Geometría inicial

Como hemos dicho en la introducción, la molécula de  $\text{H}_2^+$  está compuesta por dos protones separados por una distancia  $R$  y por un electrón. La distancia entre estos dos protones depende de cuál es el nivel de vibración de la molécula. El nivel de vibración estará relacionado tanto con el proceso de creación como con el proceso de aceleración de la molécula de  $\text{H}_2^+$ . Su carga positiva se debe a que se ha extraído un electrón (ionización) a la molécula de  $\text{H}_2$  para ser acelerada.

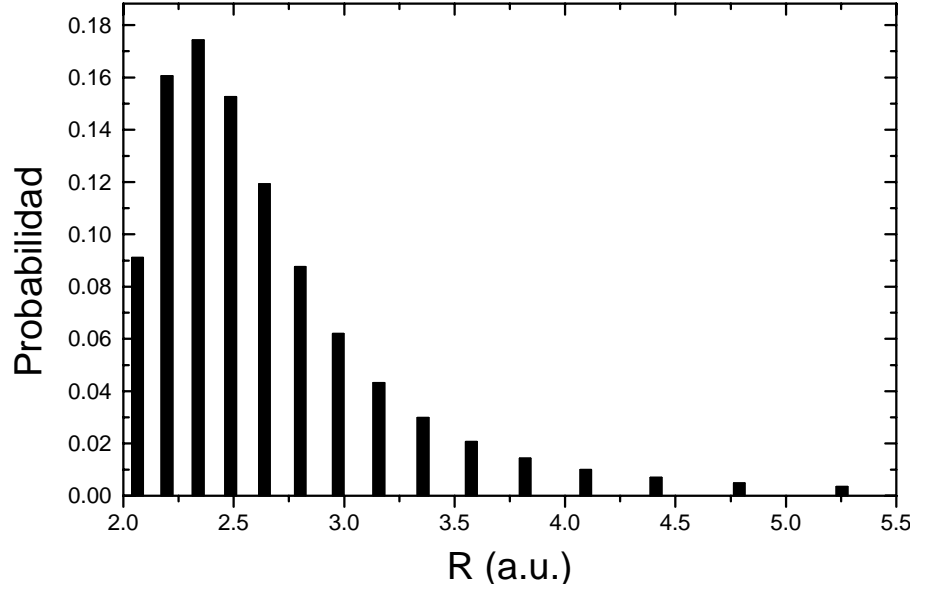


Figura 3.1: Probabilidad de las diferentes distancias internucleares entre los dos protones de una molécula de  $\text{H}_2^+$ , para los 15 primeros niveles vibracionales (calculadas en el apéndice C).

La molécula de  $\text{H}_2^+$  pierde el electrón que le queda al poco tiempo de entrar en la lámina, disociándose en sus dos protones. Al tiempo transcurrido hasta que pierde su electrón se le llama vida del ion molecular. En esta memoria no hemos estudiado la relación directa entre la geometría inicial de la molécula y su vida media, pero sí que hemos calculado el frenado molecular del ion para un valor concreto de la distancia internuclear inicial y para una orientación aleatoria inicial del vector internuclear (apartado 3.3). También es importante estudiar la geometría inicial de la molécula en el proceso de disociación, ya que las interacciones entre los protones resultantes de la posterior disociación de la molécula de  $\text{H}_2^+$  dependen de la distancia internuclear y de la orientación del eje internuclear respecto de la dirección de movimiento del haz.

Debido a todo lo dicho anteriormente hemos de tener en cuenta la probabilidad relativa de que la distancia internuclear inicial entre los dos protones de la molécula de  $\text{H}_2^+$  tenga un determinado valor  $R$ . Las barras de la figura 3.1 representan la probabilidad de las diferentes distancias internucleares medias para los veinte estados vibracionales ligados de la molécula de  $\text{H}_2^+$  calculados

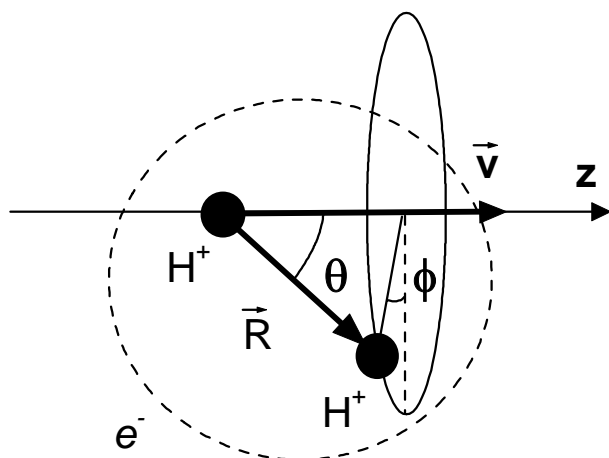


Figura 3.2: Dibujo esquemático de los ángulos  $\theta$  y  $\phi$  entre el vector internuclear  $\vec{R}$  y la dirección de movimiento de la molécula  $\text{H}_2^+$ , dada por su velocidad  $\vec{v}$ .

usando el principio de Franck-Condon (apéndice C). El estado vibracional con más probabilidad es el tercero, con una distancia internuclear igual a 2.34 a.u., mientras que la distancia internuclear media es 2.81 a.u. La gráfica nos indica que son los primeros estados los que tienen más probabilidad de estar ocupados, mientras que a partir del valor máximo la probabilidad decrece rápidamente (de hecho, no hemos representado los últimos estados porque apenas se veían).

Tal como hemos dicho anteriormente, las diversas interacciones que sufre el proyectil van a depender de la orientación inicial del proyectil respecto a la velocidad del haz. En la mayoría de experimentos no hay una orientación privilegiada, sino que las moléculas llegan a la lámina con su eje internuclear orientado al azar. Una forma de considerar la orientación molecular de todas las formas posibles de cara a la simulación y que esta orientación esté uniformemente distribuida en la esfera de orientaciones, es el método del sorteo aleatorio de los tres ángulos de Euler explicado en el apartado 2.1.

Para el caso de la molécula de  $\text{H}_2^+$  podemos utilizar otro método. Como el problema de la interacción de proyectiles que se mueven a una cierta velocidad en un material tiene simetría cilíndrica debido al campo inducido, sólo tenemos que preocuparnos de la dirección del vector internuclear de la

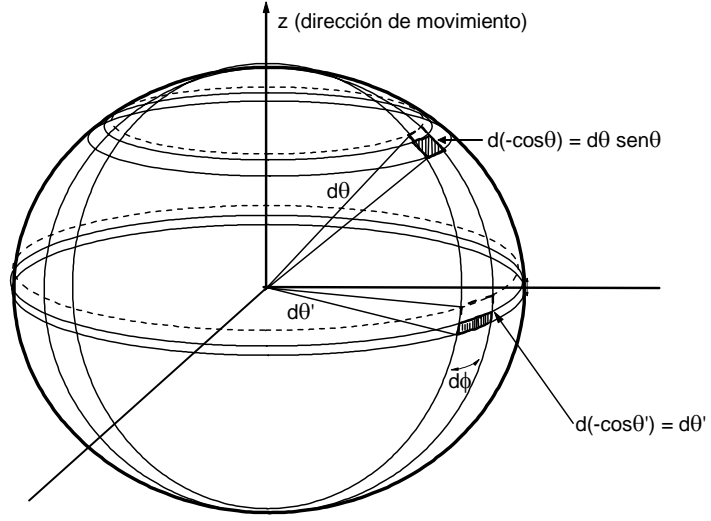


Figura 3.3: Se aprecia la igualdad de las áreas cubiertas sobre la esfera por el ángulo sólido infinitesimal  $d\Omega = d(-\cos \theta) d\phi$ , independientemente del valor del ángulo polar  $\theta$ . Esto corrobora una distribución de probabilidad uniforme del ángulo sólido, de manera que se cubren todas las direcciones del espacio por igual.

molécula de  $\text{H}_2^+$  respecto de la dirección de movimiento. Esta dirección sólo vendrá caracterizada por el ángulo polar  $\theta$  formado por el vector internuclear y la dirección de movimiento.

Como buscamos una orientación aleatoria de la molécula, el ángulo polar  $\theta$  y el azimutal  $\phi$  del vector internuclear de la molécula respecto a la dirección de movimiento, representado en la figura 3.2, han de estar uniformemente distribuidos en la esfera de orientaciones, de manera que el diferencial de ángulo sólido formado por los dos ángulos anteriores siempre abarque la misma superficie. Como el diferencial de ángulo sólido es

$$d\Omega = \sin \theta d\theta d\phi = d(-\cos \theta) d\phi, \quad (3.1)$$

tendremos que sortear  $\cos \theta$  y  $\phi$  entre  $-1$  y  $1$  y entre  $0$  y  $2\pi$ , respectivamente.

En la figura 3.3 vemos que cuando tomamos el  $d(-\cos \theta) d\phi$ , el área sombreada es la misma para cualquier valor de  $\theta$ . Si representamos el número de historias sorteadas en función del coseno del ángulo polar  $\theta$  obtenemos una distribución uniforme, como puede apreciarse en la figura 3.4a; la dis-



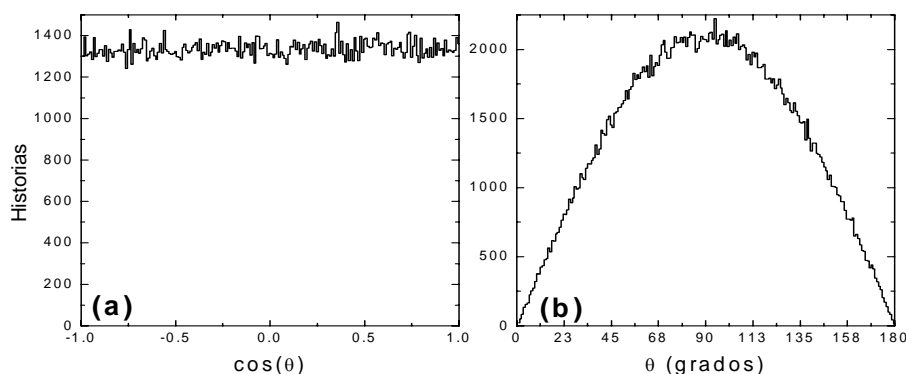


Figura 3.4: (a) Distribución uniforme de  $\cos \theta$  entre 1 y  $-1$ . (b) Distribución de  $\theta$  entre 0 y  $180^\circ$ .

tribución de los ángulos  $\theta$  se ha representado en la figura 3.4b. El sorteo del ángulo azimutal  $\phi$  da una distribución uniforme entre 0 y  $2\pi$ .

Vemos que obtenemos el mismo resultado que para el método de los ángulos de Euler explicado en el apartado 2.1. El método de los ángulos de Euler sirve para cualquier molécula, por lo que finalmente es el que implementaremos en nuestro programa de simulación para obtener una orientación aleatoria inicial de la molécula. El método presentado en este apartado sólo sirve para calcular la geometría inicial de la molécula de  $\text{H}_2^+$ , pero al ser más fácil de analizar nos sirve para corroborar los resultados obtenidos con el método de Euler.

En resumen, haremos la caracterización inicial de la molécula de  $\text{H}_2^+$  a partir de un sorteo de la distancia internuclear según su distribución de probabilidad obtenida a partir del principio de Franck-Condon (apéndice C) y un sorteo de la orientación inicial según el método de Euler (apartado 2.1).

## 3.2. Vida media

Como hemos mencionado en la introducción de este capítulo, podemos distinguir dos procesos que contribuyen a la detección de moléculas de  $\text{H}_2^+$  a la salida de la lámina: la transmisión de la molécula original y la recombinación de los protones disociados de la molécula original. Según Cue *et al.* [1980a], la fracción  $Y$  de iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos sólo depende del tiempo de tránsito

molecular  $t$  en la lámina, según la relación:

$$Y(t) = (1 - B) \exp(-t/\tau) + B \exp(-bt), \quad (3.2)$$

donde  $B$ ,  $b$  y  $\tau$  son constantes a una cierta velocidad y para cada material.

El primer término a la derecha de la igualdad en la ecuación anterior corresponde a la fracción de iones  $\text{H}_2^+$  originales transmitidos a través de la lámina y el segundo término corresponde a la fracción de iones  $\text{H}_2^+$  formados por recombinación de los fragmentos después de una captura electrónica. Como  $B \ll 1$  para altas energías,  $\tau$  es interpretada como la vida media de supervivencia que tiene la molécula original dentro del sólido [Cue *et al.* 1980a]. El valor de la vida media obtenido por Cue y colaboradores para una velocidad entre 4.0 y 6.93 a.u. en una lámina de carbono amorfo es  $\tau = 0.17 \pm 0.01$  fs y no depende de la energía del ion. Para trabajos posteriores [Susuki *et al.* 1994] a altas velocidades, 19.6 a.u., el valor encontrado es  $\tau = 0.23 \pm 0.01$  fs, el cual es 1.2 veces el valor correspondiente a bajas velocidades.

En la figura 3.5 se muestran los datos experimentales tanto del grupo de Lyon [Poizat y Remillieux 1971, Cue *et al.* 1980b] como del grupo de Kyoto [Susuki *et al.* 1994]. Vemos que el grupo de Lyon tiene menos datos en el régimen de transmisión de la molécula original (tiempos de tránsito  $\lesssim 1.5$  fs) ya que para las velocidades a las que trabajan se necesitarían espesores bastante pequeños. Podemos pensar que la vida media depende de la velocidad original de la molécula, pero parece impensable que a mayor velocidad la vida media sea más alta.

Para intentar entender la dependencia de la vida media con la velocidad podemos pensar en la similitud con el comportamiento de la transmisión del átomo de hidrógeno. En los dos casos, tanto en el del  $\text{H}_2^+$  como en el del  $\text{H}^0$ , la fracción de partículas transmitidas es uno para espesor cero, y decae exponencialmente al aumentar el espesor de la lámina. Esto sólo se puede explicar con la pérdida del electrón original. Cuando el espesor aumenta mucho, la fracción de partículas transmitidas se aproxima a una constante, lo que claramente refleja el dominio de una captura electrónica transformándose de nuevo en la partícula originaria. Se han hecho diferentes medidas de la vida media para átomos de un solo electrón, como son el  $\text{H}^0$  y el  $\text{He}^+$ , y se han obtenido resultados parecidos,  $\tau \simeq 0.2$  fs [Remillieux 1980], lo que presupone una dependencia débil en la energía de ligadura de los átomos libres.

La curva continua de la figura 3.6 muestra la vida media del átomo de hidrógeno calculada con las expresiones usadas por Château-Thierry *et al.*

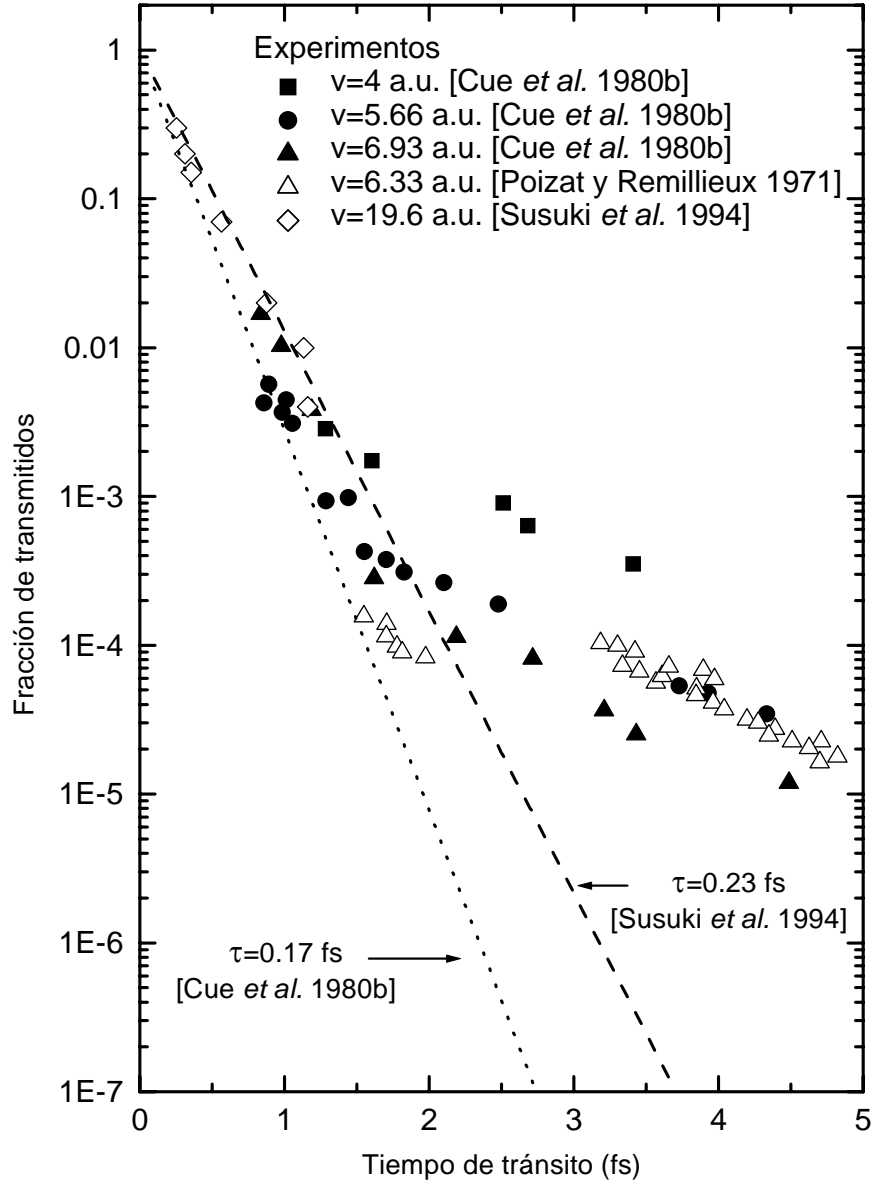


Figura 3.5: Fracción de iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos en láminas de carbono para iones  $\text{H}_2^+$  incidentes, en función del tiempo de tránsito. Los símbolos son resultados experimentales y las líneas son los ajustes experimentales a los datos correspondientes, según el primer sumando de la ecuación (3.2).

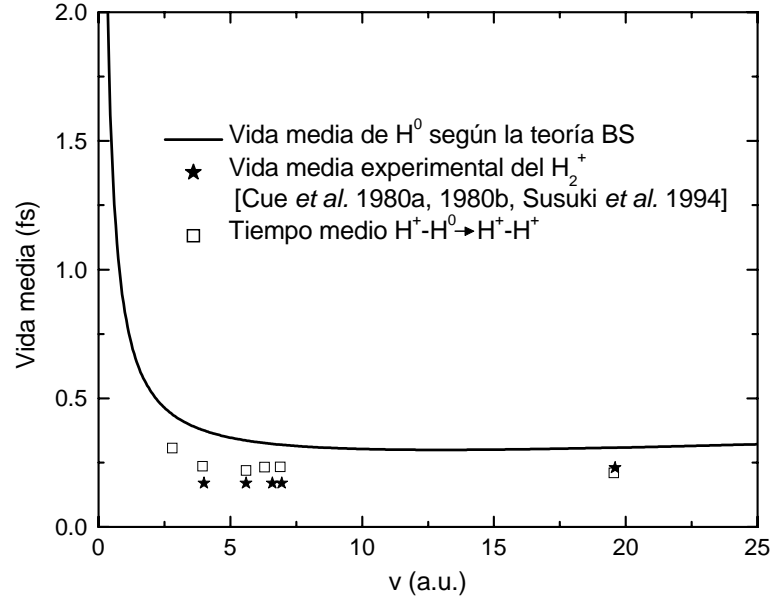


Figura 3.6: Vida media para el ion  $H_2^+$  en carbono amorfo, en función de su velocidad. La curva indica el valor teórico según la teoría BS de la vida media del átomo de hidrógeno  $H^0$ . El símbolo ★ indica los resultados experimentales obtenidos por Cue *et al.* [1980a, 1980b] y Susuki *et al.* [1994]. El símbolo □ corresponde a los tiempos calculados de la evolución de un sistema formado por dos protones y un electrón a sólo dos protones.

[1976] de la teoría Brandt-Sizmann (BS), tal que:

$$\tau_1 = \frac{1}{nv\sigma_p}, \quad (3.3)$$

donde  $n$  y  $v$  son la densidad atómica del blanco y la velocidad del proyectil, respectivamente, y  $\sigma_p$  es la sección eficaz de pérdida electrónica del átomo de hidrógeno BS [Château-Thierry *et al.* 1976]. Esta curva teórica se compara con los datos obtenidos experimentalmente para la vida media del  $H_2^+$  (símbolos ★). Vemos que los valores calculados para el átomo  $H^0$  son bastante mayores que los experimentales para el  $H_2^+$ .

Por otro lado, se nos ocurre que la vida media del  $H_2^+$  puede estar relacionada con el tiempo de la posibilidad conjunta de que un sistema formado por dos protones y un electrón se convierta en un sistema formado sólo por

dos protones. Es decir, formamos un sistema de dos protones con un electrón ligado, asignamos la probabilidad de pérdida de un electrón (correspondiente a un átomo de hidrógeno, según la teoría BS [Château-Thierry *et al.* 1976]) a cada protón del sistema y calculamos con un programa de simulación numérica el tiempo hasta que el sistema evoluciona a sólo dos protones. El resultado lo hemos representado mediante cuadros huecos ( $\square$ ) en la figura 3.6.

Este nuevo cálculo se aproxima mucho mejor a la vida media experimental del  $\text{H}_2^+$ , sobre todo para el valor 0.23 fs obtenido por Susuki *et al.* [1994]. Es por esta última razón, y por el hecho de que hay más resultados en el experimento de Susuki, que escogeremos el valor obtenido por este grupo como el valor más adecuado para la vida media del  $\text{H}_2^+$ . Usaremos este valor para calcular la energía perdida y la recombinación de los iones  $\text{H}_2^+$  tras atravesar láminas de carbono amorfo a distintas velocidades.

### 3.3. Frenado electrónico del ion $\text{H}_2^+$

Se sabe que el electrón ligado del ion molecular  $\text{H}_2^+$  reduce el poder de frenado significativamente [Kaneko 1991]. Hay muchos trabajos hechos sobre la pérdida de energía de los protones disociados de la molécula de  $\text{H}_2^+$  para estudiar los “efectos de vecindad” [Brandt *et al.* 1974, 1976, Brandt y Ritchie 1976, Eckardt *et al.* 1978, Escovitz *et al.* 1979b, Laubert 1979, Levi-Setti *et al.* 1982], sin embargo hay muy pocos trabajos dedicados a estudiar el frenado de manera que se puedan distinguir los procesos de transmisión de la molécula original de los procesos de recombinación; sólo recientemente se han publicado datos experimentales [Fritz *et al.* 1994, Susuki *et al.* 1994] y cálculos teóricos [Kaneko 1994, 1995, 1996].

El principal motivo de este apartado es el cálculo teórico del frenado electrónico de la molécula de  $\text{H}_2^+$  a primer orden de la aproximación de Born y la comparación con los resultados teóricos y experimentales ya publicados.

La base para nuestro cálculo del frenado electrónico de la molécula de  $\text{H}_2^+$  es el formalismo dieléctrico [Fermi 1940, Lindhard 1954] usando una función dieléctrica [Abril *et al.* 1994, 1998, Planes *et al.* 1996, Moreno-Marín *et al.* 2002] construida a partir de una combinación lineal de la función dieléctrica propuesta por Mermin [1970], de tal modo que permita ajustar los datos experimentales de la función de pérdida de energía.

Utilizaremos las fórmulas ya obtenidas para el cálculo del frenado electrónico del átomo de hidrógeno [Barriga-Carrasco 2000], pero ahora subs-

tituiremos la densidad de carga de un átomo hidrogenoide por la del ion molecular  $\text{H}_2^+$ .

La densidad de carga de un ion  $\text{H}_2^+$  que se mueve a una velocidad  $\vec{v}$  vendrá definida por dos cargas puntuales  $Z_1$  separadas por una distancia  $\vec{R}$  y una densidad electrónica  $\rho_{\text{el}}(\vec{r}, t)$  que las envuelve (figura 3.2). Las dos cargas puntuales corresponden a  $Z_1 = 1$ , mientras que la densidad electrónica que utilizaremos en este trabajo es la del nivel fundamental del orbital molecular  $1s\sigma_g$ .

En general, para una molécula de dos átomos con cargas puntuales  $Z_1$  con una densidad electrónica que las envuelve tenemos [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{r}, t) = Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{R}/2) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t + \vec{R}/2) - \rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t). \quad (3.4)$$

La dificultad consiste en calcular la densidad electrónica molecular del ion  $\text{H}_2^+$ .

Si suponemos los núcleos fijos, el hamiltoniano electrónico se puede resolver utilizando coordenadas elípticas confocales, llegando a una solución exacta [Levine 1977] que consiste en una serie infinita de funciones asociadas de Legendre difíciles de manejar. No existe una solución analítica para la energía electrónica  $E_{\text{el}}$ , pero se puede calcular numéricamente para cada valor de  $R$  y para cada estado. Para el caso del estado fundamental, la curva  $U(R)$ , suma de  $E_{\text{el}}$  más la repulsión internuclear  $1/R$ , tiene un mínimo en  $R_{\text{m}} = 1.9972$  a.u. y un valor de  $U(R_{\text{m}}) = -0.6026$  a.u. [Levine 1977]. Pero el difícil manejo de las correspondientes funciones de onda hace que se empleen otros modelos, debido a la mayor facilidad a la hora de operar con ellos.

Aquí vamos a comparar dos modelos fundamentales. El primero es un modelo hidrogenoide tal que el orbital molecular es una combinación lineal de la orbitales atómicos hidrogenoides de la forma:

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = N_{\text{H}} [\varphi_{\text{H}}(\vec{r} - \vec{R}/2) + \varphi_{\text{H}}(\vec{r} + \vec{R}/2)], \quad (3.5)$$

donde  $\varphi_{\text{H}}(\vec{r})$  es la función de onda normalizada:

$$\varphi_{\text{H}}(\vec{r}) = \left(\frac{1}{\pi}\right)^{1/2} \exp(-r). \quad (3.6)$$

$N_H$  es el factor de normalización, que lo calculamos igualando a uno la densidad de carga:

$$\int \rho_{el}(\vec{r}) d\vec{r} = 1 \Rightarrow \int N_H^2 [\varphi_H(\vec{r} - \vec{R}/2) + \varphi_H(\vec{r} + \vec{R}/2)]^2 d\vec{r} = 1, \quad (3.7)$$

$$N_H^2 \left[ \int \varphi_H^2(\vec{r} - \vec{R}/2) d\vec{r} + \int \varphi_H^2(\vec{r} + \vec{R}/2) d\vec{r} + 2 \int \varphi_H(\vec{r} - \vec{R}/2) \varphi_H(\vec{r} + \vec{R}/2) d\vec{r} \right] = 1, \quad (3.8)$$

$$N_H^2 [1 + 1 + 2(1 + R + R^2/3) \exp(-R)] = 1, \quad (3.9)$$

$$N_H = \left\{ \frac{1}{2[1 + (1 + R + R^2/3) \exp(-R)]} \right\}^{1/2}$$

Para este tipo de función de onda molecular el cálculo variacional da un mínimo para  $R_m = 2.5$  a.u. y  $U(R_m) = -0.465$  a.u. [Levine 1977].

El segundo modelo que presentamos aquí es un modelo de orbital molecular combinación lineal de orbitales atómicos gaussianos, propuesto por Kaneko [1995]:

$$\phi_{el}(\vec{r}) = N_G [\varphi_G(\vec{r} - \vec{R}/2) + \varphi_G(\vec{r} + \vec{R}/2)], \quad (3.10)$$

donde  $\varphi_G(\vec{r})$  es la función de onda normalizada:

$$\varphi_G(\vec{r}) = \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/4} \exp(-\alpha r^2). \quad (3.11)$$

$\alpha$  es el parámetro orbital y  $N_G$  es el factor de normalización para este nuevo orbital molecular; procediendo de forma similar al caso anterior, obtenemos [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]

$$\int \rho_{el}(\vec{r}) d\vec{r} = 1 \Rightarrow N_G = \left\{ \frac{1}{2[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}. \quad (3.12)$$

En este caso, el cálculo variacional da un mínimo para  $R_m = 2.05$  a.u.,  $\alpha = 0.43$  a.u. y  $U(R_m) = -0.531$  a.u [Kaneko 1995].

Si comparamos los dos modelos con los resultados exactos, vemos que la  $R_m$  del modelo hidrogenoide es incluso más grande que el valor medio de la distancias vibracionales obtenidas en el apéndice C ( $R_{\text{med}} = 2.438$  a.u.) y mucho más grande que la distancia para el primer nivel vibracional ( $R_1 = 2.004$  a.u.), mientras que para el modelo gaussiano la  $R_m$  es más pequeña que el valor medio, como correspondería a una  $R$  que hace mínimo el potencial, y sólo un poco mayor que el primer nivel fundamental. Es por este motivo principalmente por el que vamos a utilizar este segundo modelo a partir de ahora para nuestros cálculos de frenado electrónico.

La transformada de Fourier en cuatro dimensiones de la densidad de carga externa total, dada por la ecuación (3.4), y utilizando el modelo gaussiano para la densidad electrónica molecular es:

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{k}, \omega) = 2\pi\delta(\omega - \vec{k}\vec{v}) \rho_{\text{ext}}(\vec{k}), \quad (3.13)$$

donde

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\vec{k}) &= \int d\vec{r} \rho_{\text{el}}(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= \int d\vec{r} [Z_1\delta(\vec{r} - \vec{R}/2) + Z_1\delta(\vec{r} + \vec{R}/2) - \rho_{\text{el}}(\vec{r})] e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{R}/2} + Z_1 e^{i\vec{k}\vec{R}/2} - N_G^2 \left[ \rho_G(\vec{k}) e^{-i\vec{k}\vec{R}/2} + \rho_G(\vec{k}) e^{i\vec{k}\vec{R}/2} + \rho_i(\vec{k}) \right]. \end{aligned} \quad (3.14)$$

$\rho_i(\vec{k})$  es:

$$\begin{aligned} \rho_i(\vec{k}) &= \int d\vec{r} \varphi_G(\vec{r} - \vec{R}/2) \varphi_G(\vec{r} + \vec{R}/2) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= \int d\vec{r} \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/2} e^{-2\alpha r^2} e^{-\alpha R^2/2} e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= e^{-\alpha R^2/2} \rho_G(\vec{k}). \end{aligned} \quad (3.15)$$

La transformada de Fourier de la densidad de carga correspondiente a la función de onda dada en la ecuación (3.11) es:

$$\rho_G(\vec{k}) = \int d\vec{r} \varphi_G^2(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} = \int d\vec{r} \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/2} e^{-2\alpha r^2} e^{-i\vec{k}\vec{r}} = e^{-k^2/8\alpha}. \quad (3.16)$$

Si sustituimos estas expresiones en la ecuación (3.14) nos queda:

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{k}) = 2Z_1 \cos(\vec{k}\vec{R}/2) - \frac{e^{-k^2/8\alpha} [\cos(\vec{k}\vec{R}/2) + e^{-\alpha R^2/2}]}{[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]} \quad (3.17)$$



Calculamos el frenado electrónico utilizando la fórmula (1.1):

$$S_p = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho_{\text{ext}}^2(k). \quad (3.18)$$

Elevando  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$  al cuadrado y agrupando los términos que sólo dependen del módulo de  $\vec{k}$ , obtenemos:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}^2(\vec{k}) &= \mathcal{A}^2(k) \frac{1}{2} [1 + \cos(\vec{k}\vec{R})] \\ &\quad + \mathcal{B}^2(k) - 2\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \cos(\vec{k}\vec{R}/2), \end{aligned} \quad (3.19)$$

donde

$$\mathcal{A}(k) = 2Z_1 - \mathcal{C}(k), \quad (3.20)$$

$$\mathcal{B}(k) = e^{-\alpha R^2/2} \mathcal{C}(k), \quad (3.21)$$

y

$$\mathcal{C}(k) = \frac{e^{-k^2/8\alpha}}{[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]}. \quad (3.22)$$

Para un caso general en el que la molécula tiene una orientación aleatoria respecto de la dirección del haz, que es el más común en los experimentos, promediamos  $\rho_{\text{ext}}^2(\vec{k})$  para todo ángulo entre  $\vec{k}$  y  $\vec{R}$ , obteniendo [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]

$$\begin{aligned} \langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}} &= \mathcal{A}^2(k) \frac{1}{2} \left[ 1 + \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + \mathcal{B}^2(k) \\ &\quad - 2\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \frac{\sin(kR/2)}{kR/2}, \end{aligned} \quad (3.23)$$

que es la expresión que sustituimos en la ecuación (3.18).

Vemos que el frenado de la molécula de  $\text{H}_2^+$  depende directamente de sí misma a partir de su densidad de carga y su velocidad, mientras que sólo depende del medio frenante a través de la ELF,  $\operatorname{Im}[-1/\epsilon(k, \omega)]$ , la cual ha sido calculada previamente por nuestro grupo de investigación [Abril *et al.* 1998, Moreno-Marín *et al.* 2002].

El stragglings lo podemos calcular a partir de la ecuación (1.3):

$$\Omega^2 = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho_{\text{ext}}^2(k), \quad (3.24)$$

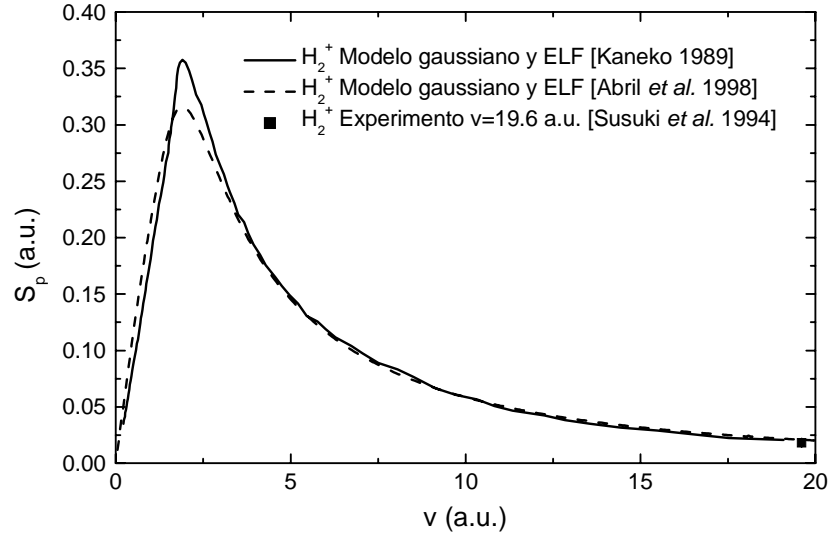


Figura 3.7: Frenado electrónico del ion  $H_2^+$  en carbono amorfo en función de la velocidad. Modelo gaussiano y ELF de Kaneko (línea continua), modelo gaussiano y nuestra ELF (línea discontinua), y modelo hidrogenoide y nuestra ELF (línea punteada). El símbolo ■ representa el resultado experimental de Susuki *et al.* [1994] para una velocidad de 19.6 a.u.

empleando la ecuación (3.23) para  $\rho_{\text{ext}}^2(k)$ .

Calculamos numéricamente las integrales (3.18) y (3.24) a partir de las expresiones correspondientes a  $\langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}}$  e  $\text{Im}[-1/\epsilon(k, \omega)]$ .

En la figura 3.7 se muestra el poder de frenado del carbono para el ion  $H_2^+$  en tres casos distintos [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]. La línea continua es el resultado del modelo de orbitales atómicos gaussianos, empleando una ELF tipo Lindhard para las excitaciones del plasmón y tipo polarización dinámica para los electrones ligados [Kaneko 1989]; la línea discontinua es el resultado obtenido con el modelo de orbitales atómicos gaussianos empleando nuestra ELF [Abril *et al.* 1998]. El resultado obtenido con el modelo de orbitales atómicos hidrogenoides empleando nuestra ELF no está representado ya que no se aprecia la diferencia entre este modelo y el gaussiano.

Vemos que los dos modelos gaussianos dan resultados iguales del poder de frenado para altas velocidades, pero si utilizamos la ELF de Kaneko [1989] para el cálculo del frenado obtenemos un valor máximo más alto que el

obtenido para nuestra ELF [Abril *et al.* 1998], aunque a la misma velocidad. También hay una pequeña discrepancia para velocidades bajas, ya que nuestra ELF da unos valores más altos para el frenado del ion  $\text{H}_2^+$  que cuando usamos la ELF de Kaneko. El hecho de que apenas haya diferencia entre el modelo gaussiano y el hidrogenoide cuando utilizamos nuestra ELF en ambos casos, nos dice que para el cálculo del frenado no es importante el orbital electrónico utilizado para definir la densidad de carga electrónica sino que lo importante es el valor absoluto de esta densidad de carga en todo el espacio.

La mejor discriminación para saber cuál es el mejor modelo para el cálculo del frenado sería su posterior comparación con resultados experimentales, pero como ya se dijo en la introducción de este apartado, hay muy pocos resultados experimentales publicados, sobre todo a bajas energías, que es donde radica la mayor diferencia.

De todas formas, adjuntamos un resultado experimental [Susuki *et al.* 1994] aunque no sirva para aclarar cuál de los modelos es el mejor, pues corresponde a una velocidad elevada, en la que todos los modelos predicen prácticamente el mismo resultado, que acuerda bastante bien con el dato experimental.

Como vimos para el caso del  $\text{H}^+$  [Barriga-Carrasco 2000], los cálculos del poder de frenado realizados a partir de nuestra ELF ajustaban mejor a los datos experimentales, por lo que nos quedaremos con ésta, y la utilizaremos junto al modelo gaussiano, ya que éste también nos da unos valores de energía mínima y distancia internuclear mínima de la molécula  $\text{H}_2^+$  más parecidos al valor exacto (tal como se discutió al principio de este apartado).

Al igual que para el frenado, podemos ver las diferencias entre emplear el modelo gaussiano de orbitales moleculares o el modelo hidrogenoide para calcular el straggling del carbono para el ion  $\text{H}_2^+$ . En la figura 3.8 representamos los resultados de los dos modelos para el straggling del  $\text{H}_2^+$ . La línea continua es para un modelo hidrogenoide, y la línea discontinua es el resultado del modelo gaussiano. Aquí la diferencia es muy pequeña, por lo no nos ayuda a elegir ninguna de las dos como la mejor. Además, no disponemos de datos experimentales con los que comparar.

A bajas energías hay más resultados experimentales para el frenado del ion  $\text{H}_2^+$ , obtenidos por el grupo de Chicago [Escovitz *et al.* 1979b, Fox *et al.* 1982, Levi-Setti *et al.* 1982]; pero a estas energías casi todos los iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos proceden de una recombinación a la salida de la lámina de dos protones que viajan disociados, por lo que el frenado no será propiamente el del ion  $\text{H}_2^+$  sino que será el de dos protones más los efectos de vecindad entre

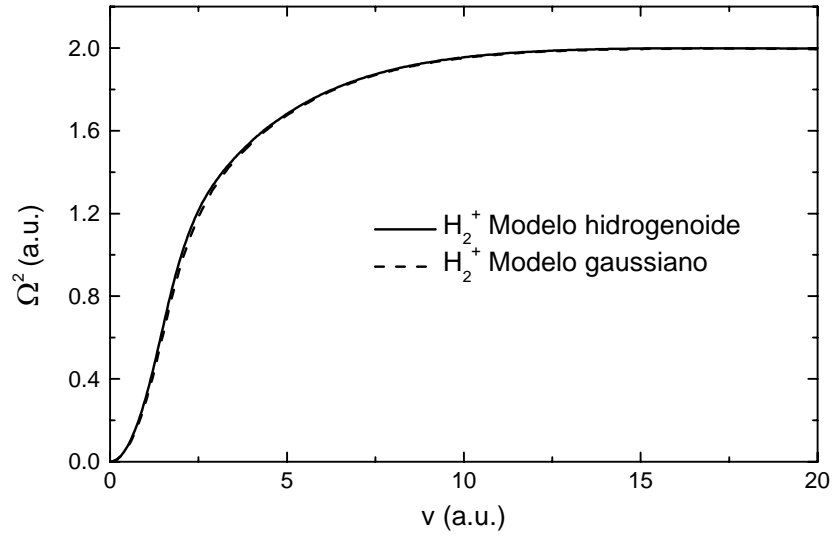


Figura 3.8: Straggling electrónico del carbono amorfo para un ion  $H_2^+$ , en función de la velocidad. La línea continua representa los resultados del modelo hidrogenoide y la línea discontinua los del modelo gaussiano, empleando en ambos casos nuestra ELF [Abril *et al.* 1998].

ellos. Este proceso se estudiará más detenidamente en el siguiente apartado, que trata sobre la recombinación del  $H_2^+$ .

En las figuras 3.9a y 3.9b [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004] podemos comparar el doble del frenado y el doble del straggling del protón, respectivamente, con el frenado electrónico obtenido para la molécula de  $H_2^+$ , calculado con nuestra ELF y para un orbital molecular gaussiano. Si el frenado de las moléculas transmitidas se parece al obtenido en este apartado se trata de una molécula original, mientras que si el frenado es parecido al del doble del protón se tratará de una molécula recombinada. Es mucho más difícil discernir las moléculas por su straggling, ya que las diferencias entre el straggling del  $H_2^+$  y el del doble del  $H^+$  no son tantas. Este análisis lo haremos con más profundidad en el apartado (3.5) de distribuciones de energía de iones  $H_2^+$  de este mismo capítulo.

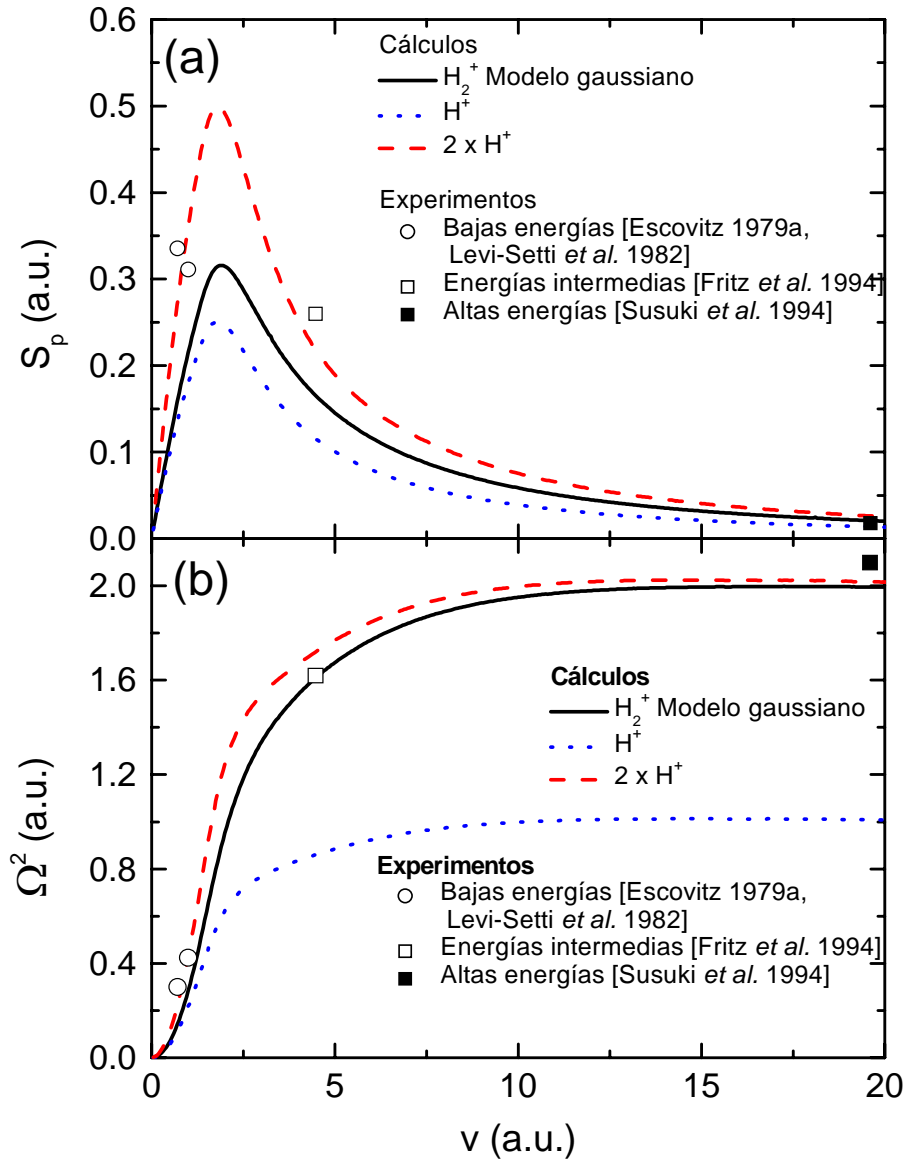


Figura 3.9: (a) poder de frenado y (b) straggling electrónico del carbono amorfo para el ion  $H_2^+$ , en función de la velocidad. La línea continua corresponde al cálculo obtenido con el modelo gaussiano. Los correspondientes para un protón se representan por una línea punteada, y el doble de esta magnitud mediante una línea discontinua. Los símbolos representan resultados experimentales a distintas velocidades.

### 3.4. Recombinación del ion $\text{H}_2^+$

En el segundo apartado de este capítulo vimos que la fórmula que define la fracción de moléculas  $\text{H}_2^+$  que atraviesa la lámina, ecuación (3.2), tenía a la derecha dos términos. El primero, de la forma  $(1 - B) \exp(-t/\tau)$ , lo asociábamos a la transmisión de la molécula original, predominaba para  $B \ll 1$  y tendía a 1 para  $t \rightarrow 0$ . El segundo término,  $B \exp(-bt)$ , corresponde a la recombinación de la molécula a partir de sus fragmentos disociados. Este término no tiende a 1 para  $t \rightarrow 0$ , decae más suavemente que el primer término, es decir  $b < 1/\tau$ , y depende fuertemente de la velocidad del ion molecular.

Además, como se dice en la introducción de este capítulo, si analizamos la pérdida de energía de estas moléculas recombinadas notamos que es similar a la pérdida de energía de dos protones que viajan juntos a la misma velocidad, menos unas pequeñas diferencias debidas a los efectos de vecindad entre éstos. En cambio, la molécula original se frena como un conjunto de dos protones con un electrón ligado, y como hemos visto en el apartado anterior, este electrón ligado hace que el frenado electrónico se reduzca notablemente. La diferencia entre estos dos regímenes la podemos observar si incluimos en la figura 3.5 tiempos de tránsito mayores, lo cual puede observarse en la figura 3.10.

Fueron Gaillard *et al.* [1976] los primeros en pensar que la recombinación dependía de que los dos protones disociados de la molécula original capturen un electrón a la salida de la lámina. No sólo eso, sino que para que se forme la molécula de  $\text{H}_2^+$  se necesita que los dos protones y el electrón capturado formen un estado ligado. Para ello es necesario estudiar la energía interna del sistema.

Nosotros consideramos que la recombinación sólo sucede para el estado electrónico  $1s\sigma_g$  o estado electrónico fundamental molecular del  $\text{H}_2^+$ . La energía interna del sistema vendrá dada por una energía cinética relativa y un potencial efectivo de disociación, que depende de la distancia interprotónica  $R$  y de la velocidad relativa  $v_{\text{rel}}$ . La energía interna del sistema de dos protones y un electrón es [Garcia-Molina y Barriga-Carrasco 2003]

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2}\mu v_{\text{rel}}^2 + U_{\text{eff}}(R, v_{\text{rel}}) = \frac{1}{2}\mu v_{\text{rel}}^2 + U(R) + \frac{L^2}{2\mu R^2}, \quad (3.25)$$

donde  $U(R)$  es el potencial de disociación del ion  $\text{H}_2^+$  del apéndice C. Para que este sistema quede ligado su energía interna debe ser menor que el máximo

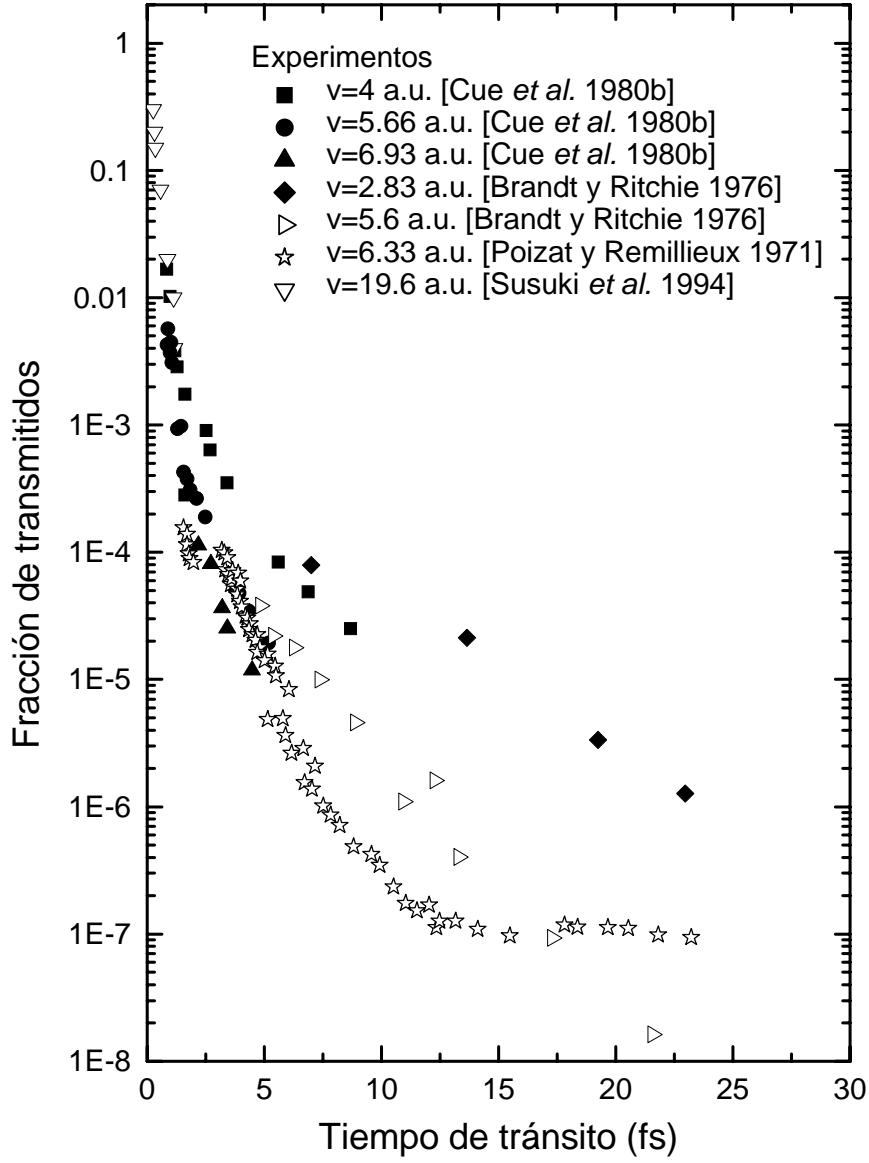


Figura 3.10: Fracción de iones  $H_2^+$  transmitidos en láminas de carbono cuando inciden iones  $H_2^+$ , para un amplio rango de tiempos de tránsito. Los símbolos representan resultados experimentales a distintas velocidades. A tiempos grandes hay una dependencia muy alta con la velocidad, lo que no ocurre para tiempos de tránsito pequeños.

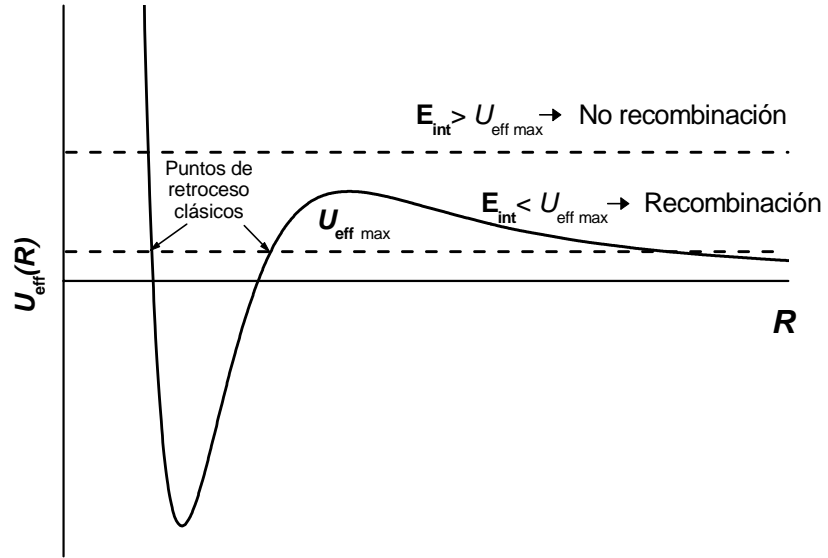


Figura 3.11: Potencial efectivo de disociación del ion molecular  $H_2^+$ . Si la energía interna total del sistema formado por dos protones y un electrón es mayor que el máximo relativo del potencial efectivo no se produce la recombinación.

del potencial efectivo de disociación, es decir:

$$E_{\text{int}} < U_{\text{eff máx}}(R, v_{\text{rel}}) \Rightarrow \text{recombinación} \quad (3.26)$$

$$E_{\text{int}} > U_{\text{eff máx}}(R, v_{\text{rel}}) \Rightarrow \text{no recombinación}, \quad (3.27)$$

donde  $\mu$  y  $\vec{L} = \mu \vec{R} \times \vec{v}_{\text{rel}}$  son la masa reducida y el momento angular relativo, respectivamente, del sistema formado. Además el valor de la distancia internuclear  $R$  ha de estar comprendido entre los valores de los puntos de retroceso clásicos del pozo de potencial efectivo de disociación. Para aclarar esta explicación podemos observar la figura 3.11.

Para recombinar el ion  $H_2^+$  en nuestro programa de simulación, necesitamos tener el sistema de partículas que forman el ion  $H_2^+$ : dos protones y un electrón. Si la recombinación sucede para dos protones disociados de una molécula original de  $H_2^+$ , necesitamos que estos dos protones capturen al menos un electrón del material para formar el sistema. Para ello hemos tenido en cuenta la posibilidad de una captura electrónica individual, según el apartado 1.1.2. Es más, hemos considerado esta captura en la superficie



de salida de la lámina, ya que la atracción del electrón por los protones no quedará apantallada por el medio material.

Una vez establecido, el sistema tenemos que calcular la energía interna de éste. Nuestro programa de simulación nos permite conocer las coordenadas y la velocidad de cada protón disociado en cualquier instante, por lo tanto podemos conocer las magnitudes relativas  $\vec{R}$ ,  $\vec{v}_{\text{rel}}$  y  $\vec{L}$  a la salida de la lámina. Conocidos estos valores, es posible calcular la energía interna así como el potencial efectivo de disociación de los dos protones y el electrón a la salida de la lámina, con lo cual se puede proceder a realizar las comparaciones de las ecuaciones (3.26) y (3.27).

Si comparamos en la figura 3.12, [García-Molina y Barriga-Carrasco 2003], los resultados obtenidos mediante nuestro programa de simulación con los resultados experimentales vemos que la concordancia es bastante buena. Primero hemos calculado la fracción de moléculas  $\text{H}_2^+$  transmitidas para una velocidad alta [Susuki *et al.* 1994]. Este cálculo lo hemos hecho sorteando el tiempo de vida de la molécula según el método Monte Carlo para el primer término de la derecha de la ecuación (3.2) con un valor de la vida media encontrado por Susuki *et al.* [1994] del apartado 3.2. Para este caso, la velocidad es tan elevada ( $v = 19.6$  a.u.) que casi todas las moléculas que se transmiten son moléculas originales y no recombinadas, por lo que no hay que incluir el segundo término de la ecuación (3.2).

Para simulaciones de experimentos a más bajas velocidades [Cue *et al.* 1980b], tenemos que a tiempos de tránsito grandes se ve un cambio en la pendiente de la gráfica logarítmica, indicando el proceso de recombinación. La recombinación es más notoria a tiempos de tránsito mayores, ya que para tiempos de tránsito pequeños queda solapada con los iones originales  $\text{H}_2^+$  transmitidos. Gracias a nuestro programa de simulación, podemos diferenciar entre moléculas transmitidas originales y recombinadas, por lo que en la figura 3.12 sólo hemos dibujado las moléculas recombinadas para bajas velocidades, para ver cómo tiende este régimen cuando los tiempos de tránsito son pequeños, ya que normalmente queda oculto bajo las moléculas originales transmitidas. Notamos que la recombinación depende fuertemente de la velocidad, es por eso que tenemos pendientes (negativas) más grandes para mayores velocidades [García-Molina y Barriga-Carrasco 2003].

Al depender la recombinación molecular de la captura electrónica, Gaillard *et al.* [1976] pensaron que si normalizábamos la fracción de moléculas recombinadas a la fracción de átomos de hidrógeno detectados a esa velocidad, se podían reducir todas las pendientes a una sola. Si observamos la figura

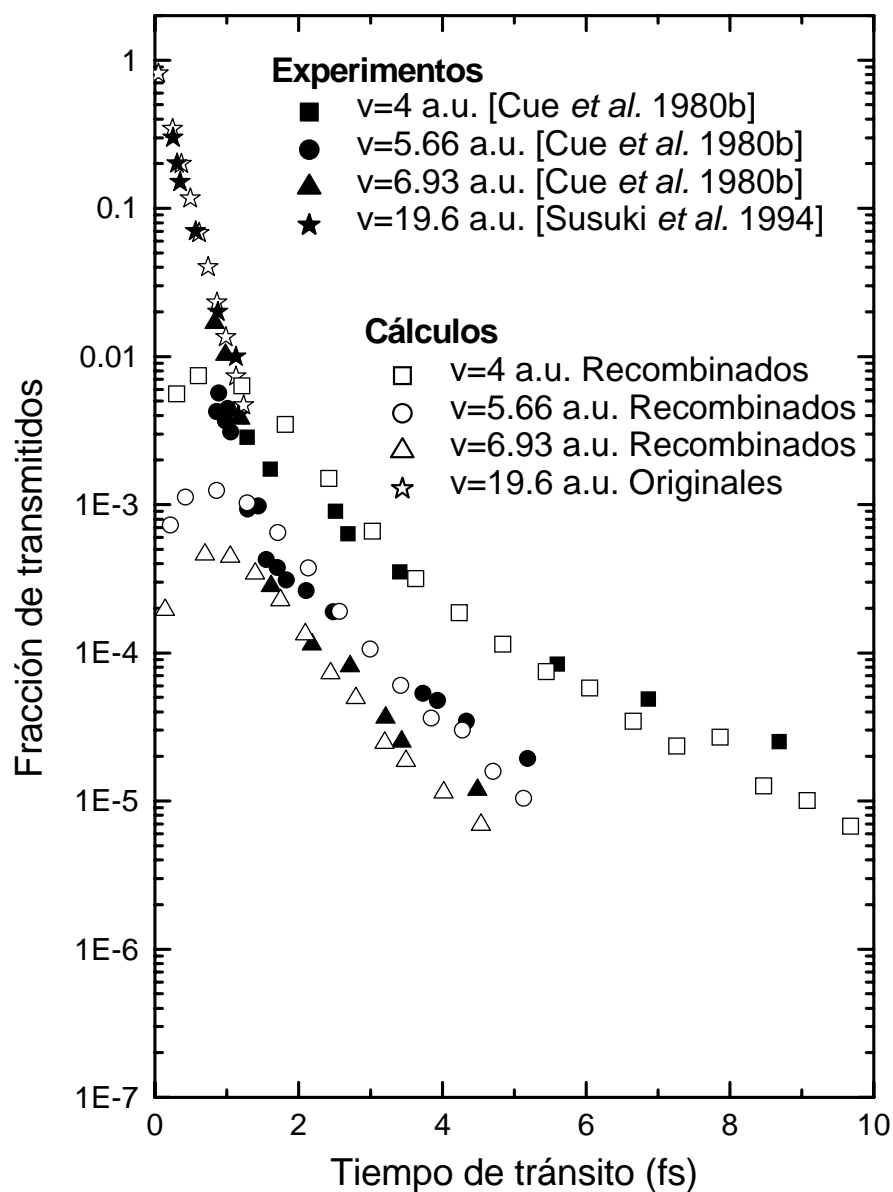


Figura 3.12: Comparación entre la fracción experimental de iones  $H_2^+$  transmitidos (símbolos rellenos) de la figura 3.10 y la fracción de iones  $H_2^+$  originales y recombinados calculados mediante nuestro programa de simulación (símbolos huecos), en función del tiempo de tránsito.

3.13, donde dividimos el número de iones moleculares transmitidos entre el doble de la fracción de átomos de hidrógeno a esa velocidad [de Castro Faria *et al.* 1986b], los valores obtenidos forman una línea continua a lo largo de tres órdenes de magnitud [Garcia-Molina y Barriga-Carrasco 2003].

A medida que el tiempo de tránsito se acerca a cero, la fracción de iones transmitidos es proporcional a la probabilidad de que, para una distribución inicial de distancias internucleares, dos protones capturen un electrón a la salida de la lámina y formen un ion molecular. El límite cuando  $t$  tiende a cero es el ratio de la probabilidad de recombinación, y debe ser independiente del material. Las curvas de fracción de recombinados normalizadas tienden a 1 para  $t \rightarrow 0$ , aunque no linealmente, para todas las velocidades. Se ve una pequeña diferencia entre los datos teóricos y experimentales para tiempos de tránsito pequeños, esta diferencia se debe a que la fracción de  $\text{H}_2^+$  experimental a tiempos de tránsito pequeños puede incluir una fracción importante de  $\text{H}_2^+$  originales.

De todos modos, el hecho de que tanto los resultados teóricos como experimentales para todas las velocidades concuerden en una curva demuestra que el número de iones moleculares transmitidos dividido por el doble de la fracción de átomos de hidrógeno en función del tiempo de tránsito es independiente de la velocidad incidente, y además nos viene a decir que el programa de simulación es capaz de reproducir satisfactoriamente los resultados experimentales disponibles, siempre que incorporemos adecuadamente los principales procesos que tienen lugar mientras los fragmentos disociados viajan por la lámina.

### 3.5. Distribuciones de energía de iones $\text{H}_2^+$

Ya hemos visto los dos tipos de moléculas  $\text{H}_2^+$  transmitidas que resultan después de incidir  $\text{H}_2^+$  sobre una lámina delgada de un cierto material. Hemos distinguido primeramente estos dos tipos, originales o recombinadas, según el tiempo de tránsito dentro de la lámina: para  $t \leq 1.5$  fs casi todas las moléculas transmitidas son originales y para  $t \geq 1.5$  fs casi todas las moléculas transmitidas son recombinadas.

Pero, como se dijo en la introducción, también podemos hacer esta distinción analizando la energía perdida por estas moléculas transmitidas. Si la energía perdida por la molécula es parecida al frenado electrónico calculado por nosotros en la sección 3.3, entonces se tratará de una molécula original.

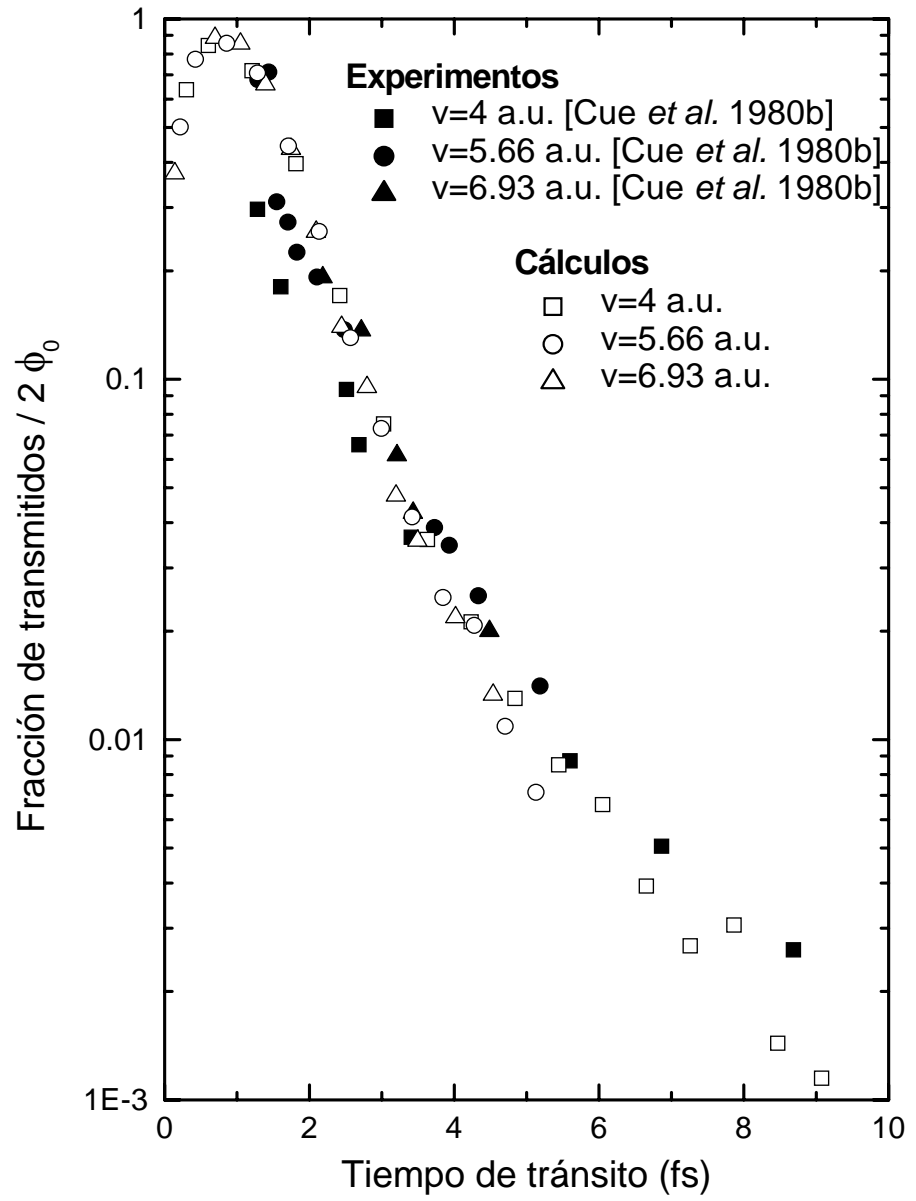


Figura 3.13: Fracción de iones  $H_2^+$  transmitidos normalizados al doble de la fracción de átomos de hidrógeno a la misma velocidad, en función del tiempo de tránsito. Los símbolos rellenos son resultados experimentales y los símbolos huecos corresponde a los cálculos de recombinación molecular realizados con nuestro programa de simulación.

Si la pérdida de energía es parecida a la de dos protones que viajan juntos, es decir al doble del frenado electrónico de un protón, se tratará de una molécula recombinada. Para ello vamos a comparar los espectros de energía experimentales a través de láminas de carbono amorfo con los obtenidos con nuestro programa de simulación.

Vamos a dividir los experimentos a comparar según la energía a la que se han realizado. Primero estudiaremos los experimentos a bajas energías realizados por el grupo de Chicago [Escovitz *et al.* 1979b, Fox *et al.* 1982, Levi-Setti *et al.* 1982]. Luego iremos subiendo de energía (experimentos del grupo de Kyoto [Fritz *et al.* 1994]), para finalmente acabar a altas energías con trabajos de este mismo grupo de investigación [Susuki *et al.* 1994].

### 3.5.1. Bajas energías

Los experimentos del grupo de Chicago estudian los procesos de recombinación y transmisión del ion original  $\text{H}_2^+$  por debajo y a la misma velocidad de Bohr,  $v = 0.71$  y  $1.00$  a.u.

En estos experimentos se investiga también cómo los efectos de vecindad y la repulsión coulombiana entre los protones disociados de la molécula original afectan al proceso de recombinación. Para ver procesos de transmisión original a estas velocidades se necesitan unas láminas muy finas de 28.36 a 56.71 a.u., además la fracción de neutros a estas velocidades es muy alta (70 %), por lo que la recombinación de  $\text{H}_2^+$  también será muy alta.

A continuación representamos en las figura 3.14a, 3.14b y 3.15 las distribuciones de energía experimental y calculadas mediante nuestro programa de simulación [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]. Podemos ver por la simetría de las distribuciones de energía que el número de moléculas transmitidas recombinadas es independiente de las energías de los fragmentos disociados que la forman, ya que si dependiera de ello habría más cantidad de moléculas recombinadas para una cierta energía. Las pequeñas asimetrías a bajas energías que vemos en todas las distribuciones de energía no se deben a que la recombinación se de más a una energía que a otra, sino que es una característica de las colisiones nucleares que ha sufrido la partícula durante el recorrido en la lámina. Esto queda demostrado al ver que estas asimetrías van desapareciendo a medida que aumentamos la velocidad de la partícula incidente, ya que a mayores velocidades los efectos de las colisiones nucleares en las distribuciones de energía son mucho menores. Esta característica es más notable en las distribuciones experimentales.

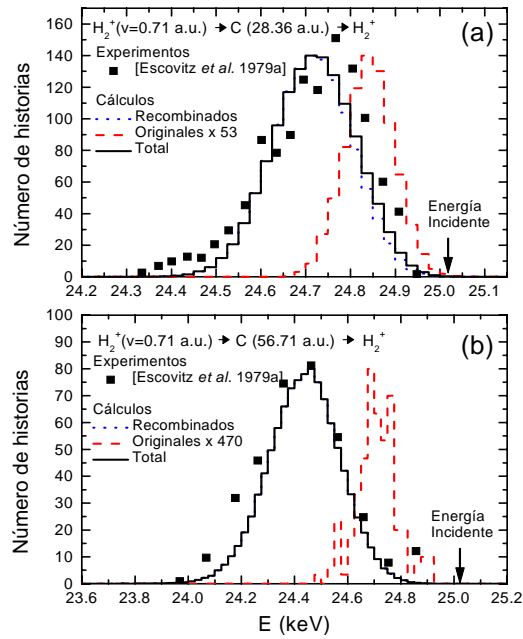


Figura 3.14: Espectro de energía para todo ángulo de iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo de: (a) 28.36 a.u. y (b) 56.71 a.u. de espesor, para un haz incidente de iones  $H_2^+$  a una velocidad 0.71 a.u. (12.6 keV/amu). Se comparan los resultados experimentales con los calculados para iones transmitidos recombinados (línea punteada), transmitidos originales (línea discontinua, ampliada (a) 53 veces y (b) 470 veces) y totales (línea continua).

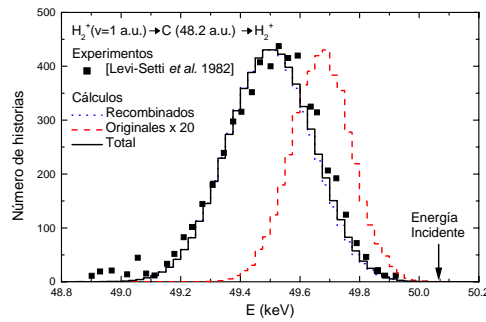


Figura 3.15: Igual que la figura 3.14 pero para un espesor de 48.20 a.u. y una velocidad incidente de 1 a.u. (25.04 keV/amu) El número de iones transmitidos originales ha sido ampliado 20 veces.

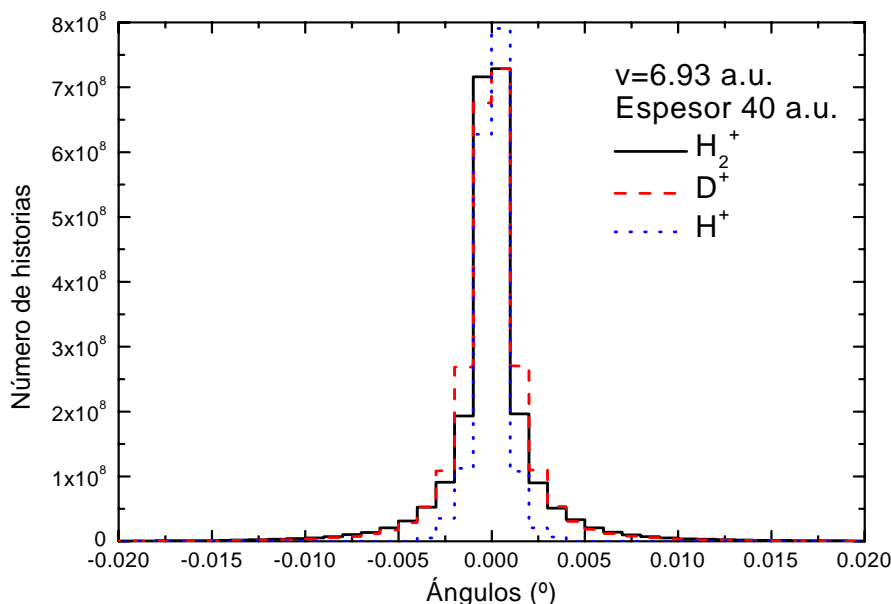


Figura 3.16: Distribuciones de ángulos para los iones  $\text{H}_2^+$  (línea continua),  $\text{D}^+$  (línea discontinua) y  $\text{H}^+$  (línea punteada) a una velocidad  $v = 6.93$  a.u., después de atravesar una lámina de carbono amorfo de 40 a.u. de espesor.

Si analizamos las distribuciones de ángulo de salida de iones originales  $\text{H}_2^+$ , figura 3.16, podemos ver que también son simétricas (mostramos esta figura para una velocidad del proyectil muy superior porque para las velocidades de los experimentos que estudiamos no suceden muchas colisiones nucleares). Gracias a la simetría de las distribuciones podemos asumir que la fracción de moléculas recombinadas es independiente del ángulo de salida. Esto nos quiere decir que la recombinación se produce por igual a todo ángulo y por lo tanto los espectros experimentales a ángulo cero tendrán la misma fracción de recombinados que los espectros a todo ángulo. Además el valor medio del ancho de la distribución de ángulo de los iones originales  $\text{H}_2^+$  es igual al del deuterio  $\text{D}^+$  y la mitad que el de un protón  $\text{H}^+$ . Esto nos quiere decir que también podremos saber si el ion  $\text{H}_2^+$  transmitido es original o recombinado; si es original el ancho de la distribución de ángulo se parecerá al del deuterio y si es recombinado se parecerá al del protón.

Gracias a que en el programa de simulación podemos distinguir fácilmente entre los iones  $\text{H}_2^+$  originales y recombinados, como se demuestra en las

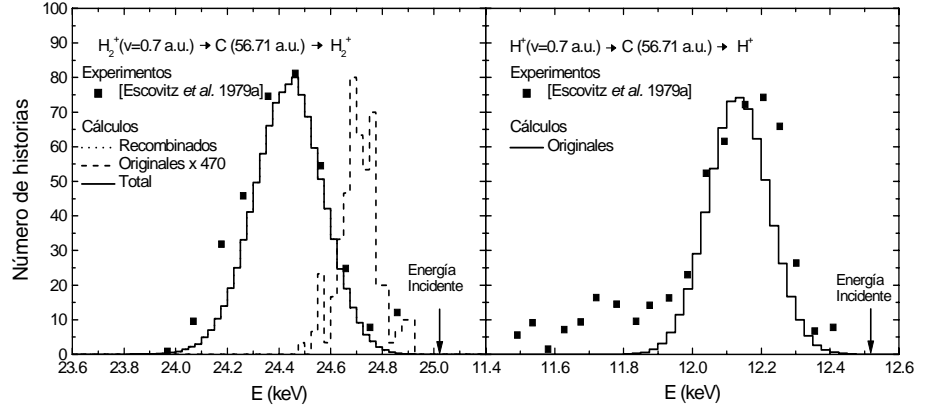


Figura 3.17: Comparación entre la figura 3.14b y el correspondiente espectro de energía para protones incidentes con la misma velocidad.

figuras 3.14a, 3.14b y 3.15 anteriores, nos damos cuenta de que casi todos los  $H_2^+$  que recogen los experimentales son iones recombinados. Éstos vienen caracterizados por una pérdida de energía y un ancho en las distribuciones de energía que son mayores que en el caso de los iones transmitidos originales. Esto se debe en primer lugar a que la pérdida de energía de los iones recombinados  $H_{2Re}^+$  es la suma de la pérdida de los dos fragmentos que lo han formado, en consecuencia, es dos veces la pérdida de energía de un protón a la misma velocidad para un espesor dado, más ciertas desviaciones debidas a la interacción entre éstos. Lo mismo pasa para el cuadrado del ancho de las distribuciones, que es proporcional al straggling (figura 3.17):

$$\Delta E (H_2^+ \rightarrow H_{2Re}^+) \simeq 2 \times \Delta E (H^+ \rightarrow H^+), \quad (3.28)$$

$$\Omega^2 (H_2^+ \rightarrow H_{2Re}^+) \simeq 2 \times \Omega^2 (H^+ \rightarrow H^+). \quad (3.29)$$

Si nos fijamos en las distribuciones totales obtenidas mediante nuestra simulación (líneas continuas en las figuras 3.14a, 3.14b y 3.15) vemos que ajustan bastante bien a las distribuciones obtenidas experimentalmente. Además, si calculamos el valor medio del poder de frenado y el straggling de la distribución de la pérdida de energía experimental ( $S_p = 0.34$  y  $\Omega^2 = 0.30$  a.u. para  $v = 0.71$  a.u.; y  $S_p = 0.31$  y  $\Omega^2 = 0.43$  a.u. para  $v = 1.00$  a.u.) y lo colocamos en las figuras 3.9a y 3.9b teóricas vemos que el resultado es



parecido al frenado electrónico para dos protones, esperado para un proceso donde la recombinación es mayoritaria.

A continuación (figura 3.18) mostramos las distribuciones de la distancia internuclear,  $R$ , y del momento angular,  $L$ , del sistema de dos protones y un electrón en el momento de formar un ion  $\text{H}_2^+$  recombinado para el caso de la velocidad  $v = 0.71$  a.u. y para distintos espesores de la lámina de carbono amorfo. Tanto la distancia internuclear como el momento angular dependen de varios factores. La distancia internuclear aumenta debido principalmente a la explosión coulombiana, apantallada por los efectos de vecindad electrónicos, pero también aumenta debido a las colisiones nucleares y al straggling del frenado electrónico.

A velocidades bajas, las colisiones nucleares son muy importantes, haciendo que las distribuciones de distancia internuclear y de momento angular se ensanchen rápidamente a medida que aumenta el tiempo de tránsito en la lámina. El valor medio de la distribución de distancias internucleares se va haciendo mayor a medida que aumenta el espesor de la lámina, debido sobre todo, a la repulsión coulombiana; también sucede lo mismo con la distribución del momento angular ya que depende linealmente de la distancia internuclear.

### 3.5.2. Energías intermedias

En el trabajo de Fritz y colaboradores [1994], se intenta diferenciar los mecanismos de transmisión original y recombinación a partir de experimentos de frenado electrónico. El poder de frenado del carbono para iones  $\text{H}_2^+$  a velocidades de 4.47 a.u. (1 MeV) es medido utilizando láminas cuyo espesor varía entre 2 y 8  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , siendo su densidad 1.65  $\text{g}/\text{cm}^3$ . Los resultados experimentales los comparamos con nuestros cálculos del poder de frenado para dos protones que viajan juntos (diprotón) y para el ion molecular  $\text{H}_2^+$ .

En las figuras 3.19a y 3.19b se observan dos ejemplos de distribuciones de energía de iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos a través de dos láminas de distinto espesor [Barriga-Carrasco y García-Molina 2004]. Las distribuciones muestran picos agudos que decrecen y se hacen más anchos para el espesor mayor. Vemos que los resultados obtenidos a partir de nuestro programa de simulación dan unos ajustes buenos a las distribuciones experimentales. Los iones transmitidos originales son más importantes aquí, sobre todo para el espesor menor, ya que el tiempo de tránsito en la lámina es pequeño dada la velocidad del experimento ( $v = 4.47$  a.u.). También se reducen los iones recombinados que salen, ya que

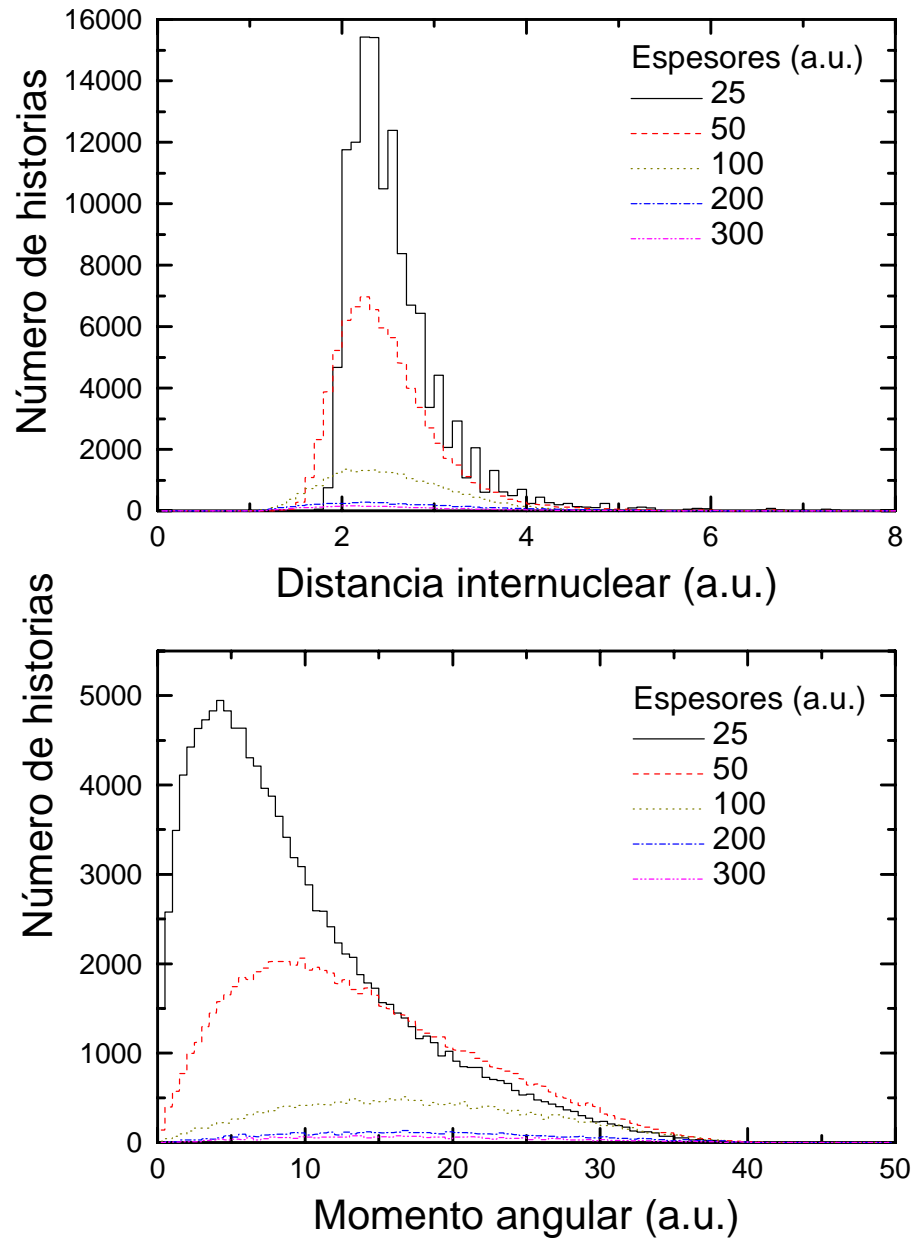


Figura 3.18: Distribuciones de la distancia internuclear,  $R$ , y del momento angular,  $L$ , antes de formar un ion  $H_2^+$  recombinado, para el caso de la velocidad  $v = 0.71$  a.u. y para distintos espesores de la lámina de carbono amorfo.

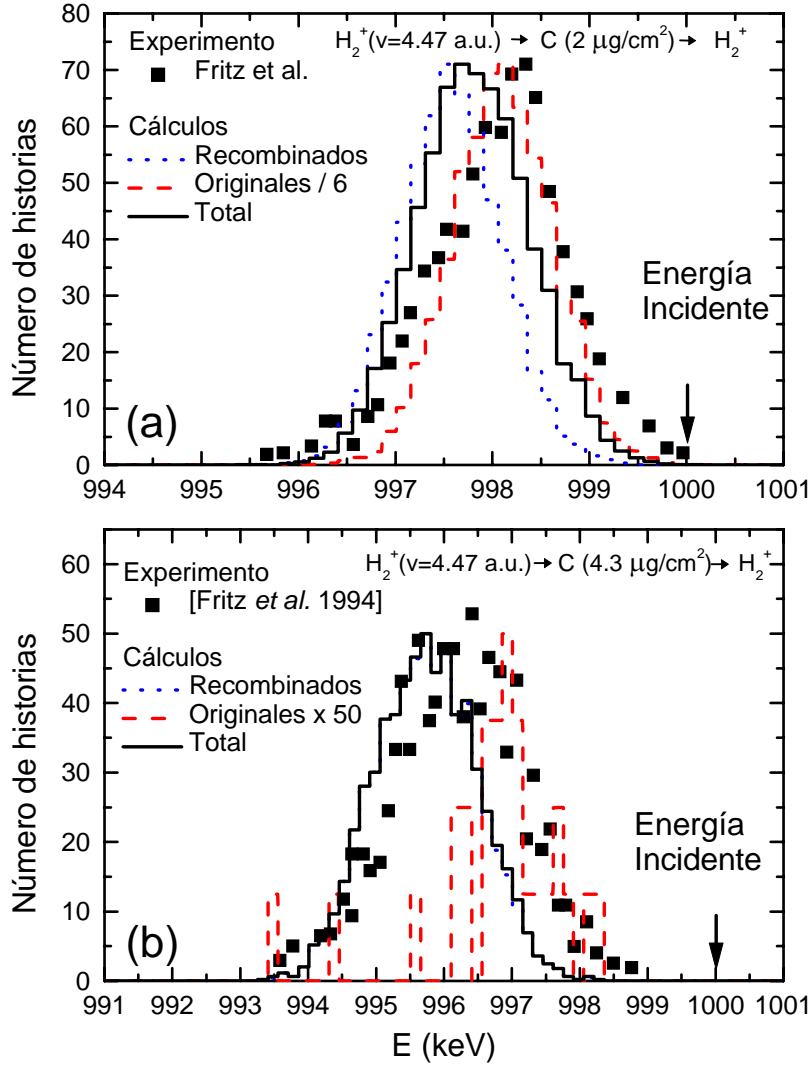


Figura 3.19: Espectro de energía de iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo, para un haz incidente de iones  $H_2^+$  con una velocidad inicial de 4.47 a.u. (1 MeV). El espesor de la lámina es: (a)  $2 \mu g/cm^2$  y (b)  $4.3 \mu g/cm^2$ . Se comparan los resultados experimentales con los calculados para iones transmitidos recombinados (línea punteada), transmitidos originales (línea discontinua, (a) dividida por 6 y (b) ampliada 50 veces) y totales (línea continua).

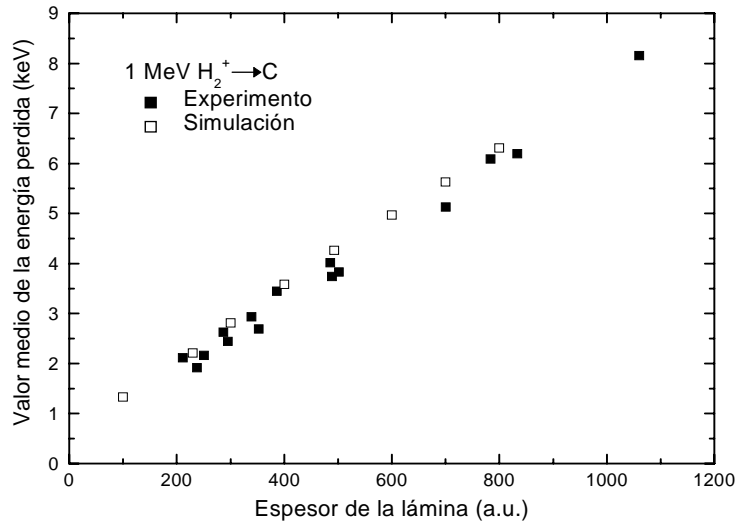


Figura 3.20: Valor medio de la energía perdida por iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo, en función del espesor de la lámina, para una energía del haz incidente de 1 MeV. Los símbolos  $\blacksquare$  representan los datos experimentales de Susuki *et al.* [1994] y los símbolos  $\square$  corresponden a los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación.

la fracción de neutros a estas velocidades es mucho menor (0.3 %) que a bajas velocidades.

Para obtener la energía perdida experimental se calcula la diferencia entre la energía incidente y la energía media de la distribución energética de los iones  $H_2^+$  transmitidos. Si a partir de las distribuciones de energía calculamos el valor medio de la energía perdida para varios espesores entre 2 y 8  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , al igual que hace el grupo experimental, obtenemos los resultados representados en la figura 3.20 [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]. Hay que destacar el excelente ajuste de nuestros cálculos y los resultados experimentales. La energía perdida medida aumenta linealmente con el espesor de la lámina, con un valor de la pendiente de  $0.81 \pm 0.02 \text{ keV}/(\mu\text{g}/\text{cm}^2)$ ,  $0.260 \pm 0.006 \text{ a.u.}$ . Si ponemos este valor del poder de frenado en nuestra figura de referencia (figura 3.9a) vemos que es 1.18 veces mayor que el doble del poder de frenado para el  $H^+$  a la misma velocidad, pero que difiere notablemente del valor correspondiente del poder de frenado para el ion  $H_2^+$ .

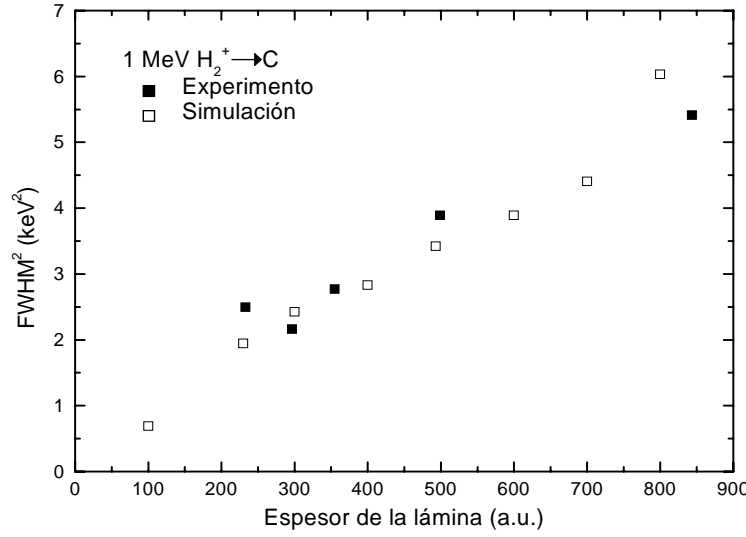


Figura 3.21: FWHM al cuadrado de la pérdida de energía de iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo, en función del espesor de la lámina, para una energía del haz incidente de 1 MeV. Los símbolos ■ representan los datos experimentales de Susuki *et al.* [1994] y los símbolos □ corresponden a los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación.

Esto último, junto con los pocos resultados obtenidos para la fracción de iones transmitidos originales en las distribuciones energéticas teóricas, nos hace concluir que el mecanismo de recombinación es el principal proceso en este experimento.

Lo siguiente que notamos en la figura 3.20 es que ni los resultados experimentales ni los calculados pasan por un poder de frenado nulo para un espesor cero de la lámina. Esto puede ser debido a otras pérdidas de energía, como la que se produce en la pérdida de un electrón en la transmisión original o la captura de un electrón en la recombinación, o también debido a pérdidas de energía en los efectos de vecindad entre los protones antes de que se recombinen.

Además del valor medio de la energía perdida, podemos estudiar el straggling en la energía de los iones  $H_2^+$  transmitidos. La figura 3.21 presenta el cuadrado del ancho total a mitad de altura (FWHM) en función del espesor de la lámina [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]. Al igual que la figura

para la pérdida de energía, nuestros cálculos concuerdan bastante bien con los resultados experimentales. El FWHM al cuadrado crece linealmente con el espesor, de donde podemos obtener el valor siguiente para la raíz cuadrada del straggling:  $\Omega = 1.22 \pm 0.16$  a.u. Si ponemos este valor en la figura comparativa 3.9b, vemos que este valor es más parecido al valor del straggling del  $\text{H}_2^+$  teórico, propio de una transmisión original, que al del diprotón, propio de la recombinación. Pero esto también puede ser achacado a los efectos de vecindad entre los protones antes de recombinarse. De todos modos el valor obtenido no difiere mucho del straggling del diprotón.

Al igual que pasa para la energía perdida, la gráfica no pasa por cero a espesor cero, lo cual es debido a que la energía del haz incidente tiene un ancho inicial igual al valor de corte a espesor cero,  $0.97 \pm 0.3$  keV<sup>2</sup> [Fritz *et al.* 1994].

### 3.5.3. Altas energías

Finalmente vamos a analizar el experimento de Susuki *et al.* [1994] correspondiente a una velocidad  $v = 19.6$  a.u. (9.6 MeV/amu). En este experimento se mide la energía perdida por los iones  $\text{H}_2^+$  a dicha velocidad después de atravesar láminas de carbono amorfo de espesores entre 1.5 y 8.5  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . En este trabajo se trata de medir el frenado electrónico de la molécula original de  $\text{H}_2^+$ .

Como ya se ha comentado antes, nuestro programa de simulación diferencia entre los iones originales y los recombinados, por lo que podremos decir si los iones recogidos experimentalmente son mayoritariamente originales. La figura 3.22 muestra el número de iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos, tanto originales como recombinados. El número de iones transmitidos decrece rápidamente, como el primer término de la parte derecha de la ecuación (3.2), por lo que en consecuencia podemos decir que se trata de un proceso de transmisión original. Si ajustamos los valores experimentales por mínimos cuadrados obtenemos un valor de la vida media de  $0.23 \pm 0.01$  fs, la cual es 1.4 veces el valor obtenido para los experimentos a energías intermedias (0.4 – 1.2) MeV/amu, del grupo de Lyon (ver sección 3.2).

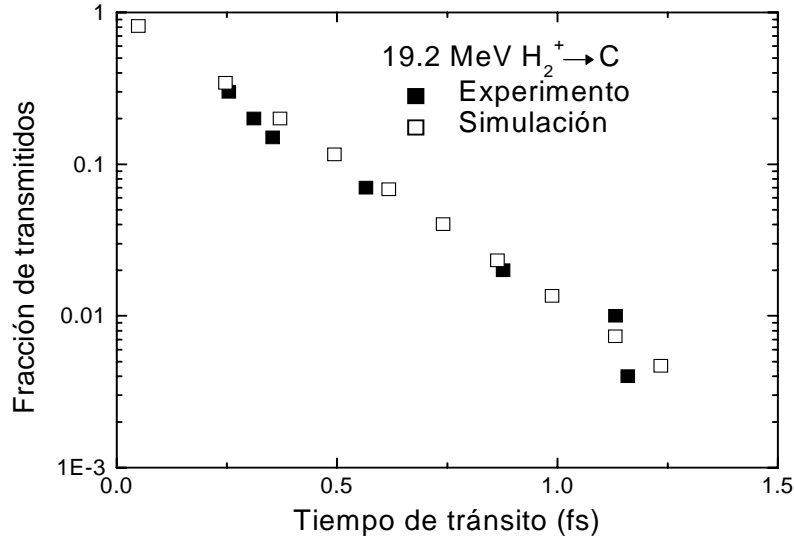


Figura 3.22: Fracción de iones  $H_2^+$  transmitidos en láminas de carbono para iones  $H_2^+$  incidentes a una energía de 19.2 MeV. Los símbolos rellenos representan resultados experimentales de Susuki *et al.* [1994] y los símbolos huecos son los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación.

En la figura 3.23 mostramos un ejemplo de las distribuciones energéticas, experimental y calculada, de la transmisión de los iones  $H_2^+$  para una lámina de 915 a.u. de espesor [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]. No representamos la curva correspondiente a los recombinados porque no obtenemos, a estas velocidades y para estos espesores, ningún resultado en nuestra simulación.

La energía perdida por estos iones originales la podemos hallar observando el desplazamiento de la energía media de la distribución de transmitidos respecto a la energía media de la distribución incidente, al igual que se hizo para energías intermedias. Si calculamos el poder de frenado a partir de la distribución de energía obtenemos un valor de  $S_p = 1.81 \pm 0.15 \times 10^{-2}$  a.u.

Comparando este resultado en nuestra figura de referencia 3.9a notamos que el valor obtenido se acerca más al valor del frenado para el  $H_2^+$  que para el diprotón, tal como correspondería a un proceso de transmisión original. En cuanto al valor para la raíz cuadrada del straggling que obtenemos del

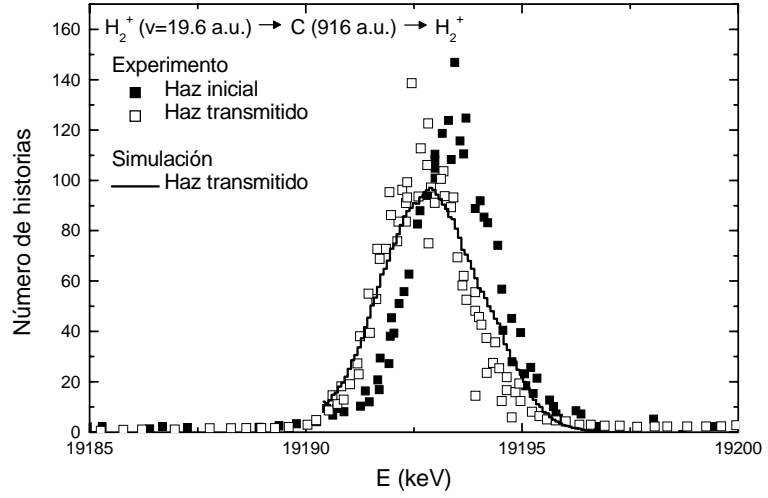


Figura 3.23: Espectro de energía de iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo de 916 a.u. de espesor, para un haz incidente de iones  $H_2^+$  a una velocidad 19.6 a.u. (9.6 MeV/amu). Se comparan los resultados experimentales para el haz incidente (símbolos rellenos) y para el haz transmitido (símbolos huecos) con los calculados con nuestro programa de simulación para el haz transmitido (histograma).

ancho de las distribuciones de la figura 3.23 es  $\Omega = 1.45 \pm 0.1$  a.u. Este valor está un poco alejado por encima del resultado teórico para el ion  $H_2^+$  (figura 3.9b), pero podemos pensar que es debido a que el haz incidente ya tiene un ancho de energía considerable.

### 3.6. Distribuciones de energía de iones $H^+$

En esta sección vamos a estudiar los espectros de energía de los protones disociados de la molécula de  $H_2^+$ . En estos espectros estudiaremos los diferentes efectos de vecindad que ocurren en la transmisión correlacionada de dos protones disociados de la misma molécula de  $H_2^+$  y cómo los procesos de pérdida y captura electrónica de un protón quedan afectados por la vecindad del otro protón. Fueron Laubert y Chen [1978] los primeros que obtuvieron información sobre la fracción de carga de los iones de hidrógeno a través del análisis del espectro de energía correspondiente a los fragmentos de la



molécula de  $\text{H}_2^+$ .

En un primer apartado presentamos las distribuciones de energía obtenidas experimentalmente y teóricamente (a partir de nuestro programa de simulación) para los fragmentos disociados en una lámina de aluminio procedentes de una molécula de  $\text{H}_2^+$  incidente a unas velocidades  $v \sim 1$  a.u. [Denton *et al.* 2002]. En un segundo apartado también estudiaremos las mismas distribuciones de energía pero para láminas de carbono amorfo y a unas velocidades  $v > 1$  a.u. [Abril *et al.* 2004]. Tanto en el uno como en el otro, modificaremos el valor de la fracción de carga que usamos en los cálculos teóricos, para encontrar el mejor ajuste a la distribución experimental, de esta forma podremos verificar o estimar el valor de las fracciones de carga para distintos materiales y distintas velocidades.

En los dos casos hemos colaborado estrechamente con los grupos experimentales que realizaron las medidas por lo que disponemos de información detallada de los aparatos experimentales.

### 3.6.1. Bajas energías

El espectro energético experimental fue determinado por medio de un analizador energético situado en la dirección del haz y con una aceptación de  $0.05^\circ$ . La resolución energética total, incluyendo el efecto de la incertidumbre en la energía del haz, es de 0.003. El espesor de la lámina fue determinado por el ajuste de la pérdida de energía de los protones más energéticos ( $\sim 100$  keV/amu) a los valores tabulados por Ziegler *et al.* [1985]. La homogeneidad del espesor fue hallada a través de una técnica de haces, resultando una desviación cuadrática media  $\leq 0.12$ . El aumento del espesor de la lámina debido al bombardeo del haz fue contenido dentro de unos límites despreciables usando dosis bajas de haces y comparando la energía perdida antes y después de la serie de medidas.

La figura 3.24 muestra la distribución de energía medida para protones procedentes de la disociación del ion  $\text{H}_2^+$ , saliendo de una lámina de aluminio en la dirección del haz, para diversas energías incidentes, centradas en la pérdida de energía media del espectro [Denton *et al.* 2002]. Además se muestran las distribuciones de energía correspondientes a proyectiles  $\text{H}^+$  que inciden a las mismas energías. La comparación de los diferentes espectros de energía, para protones procedentes de  $\text{H}_2^+$  y  $\text{H}^+$ , muestra los cambios sufridos debidos a los efectos de vecindad en función de la energía del haz incidente.

A efectos de comparar, indicamos en la figura 3.24 con líneas verticales

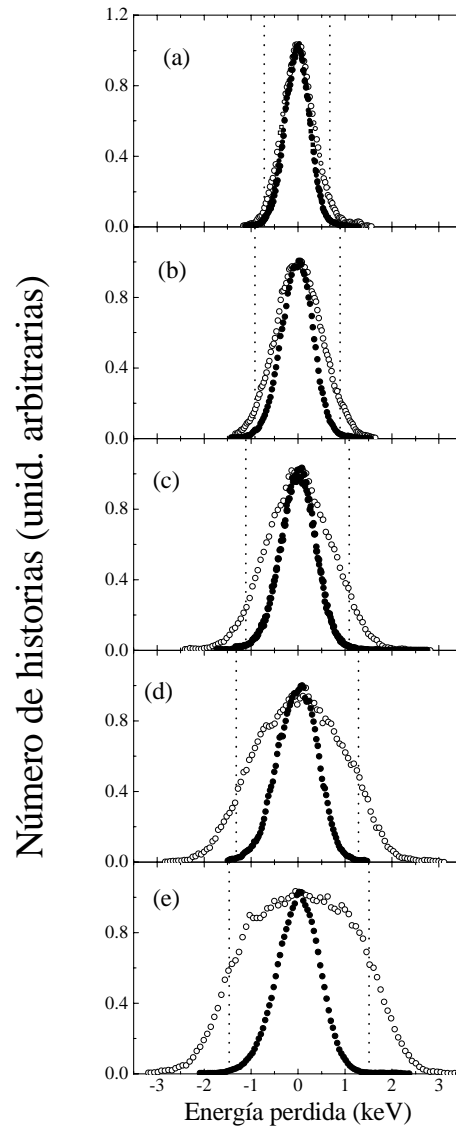


Figura 3.24: Distribuciones de energía experimentales de protones disociados de iones  $H_2^+$ , después de atravesar una lámina de aluminio de 359 a.u. de espesor (círculos huecos). La energía del proyectil incidente  $E_0$  es: (a) 23.8 keV/amu, (b) 39.2 keV/amu, (c) 56.7 keV/amu, (d) 78.8 keV/amu y (e) 101.8 keV/amu. Lo mismo para protones (círculos rellenos). Las líneas verticales representan las energías que tendrían los protones resultantes de una explosión coulombiana en el vacío.

las energías correspondientes a los protones disociados de una molécula de  $\text{H}_2^+$  tras una hipotética explosión coulombiana en el vacío con una distancia internuclear inicial de 2.44 a.u.; de este modo, podemos comparar los anchos del espectro de energía de los fragmentos con los del caso puramente coulombiano. La figura indica una transición desde casi un apantallamiento total de la explosión coulombiana debido al medio electrónico de la lámina, para la energía más pequeña, hasta casi un no apantallamiento para el valor de energía más alta.

El cálculo teórico de las distribuciones de energía ha sido realizado con nuestro programa de simulación, donde implementamos las interacciones del proyectil descritas anteriormente (capítulo 1): frenado electrónico, pérdida y captura electrónica, efectos de vecindad electrónicos, dispersión nuclear y explosión coulombiana. Los procesos de cambio de carga, en los cuales los fragmentos capturan o pierden electrones, han sido incorporados en el programa de simulación escogiendo, cada cierto paso de tiempo, el estado de carga (neutro o protón) de cada fragmento, a partir de la fracción de carga neutra de equilibrio  $\phi_0$ , la cual es un parámetro de la simulación. Para cada paso de tiempo se han usado los valores de la fuerzas de vecindad, del frenado electrónico y de la repulsión coulombiana correspondiente a los estados de carga de cada fragmento.

Después de salir de la lámina, los fragmentos experimentan una repulsión coulombiana pura en el vacío si ambos están cargados positivamente, si alguno de ellos es neutro, no interaccionan entre sí y viajan libremente. La consideración de la explosión coulombiana fuera de la lámina es importante porque la explosión coulombiana que ocurre dentro del material no es completa, sobre todo para las energías más altas.

Para considerar el efecto de aceptación angular del experimento, sólo hemos tenido en cuenta en nuestro cálculo los protones emergentes dentro de un cono angular de  $0.05^\circ$  (los mismos que los del detector experimental) alrededor de la dirección del haz. Como son pocos los protones que llegan al detector, para obtener una buena estadística en nuestros resultados necesitamos simular más o menos historias dependiendo de la velocidad del proyectil y de la fracción de neutros que consideremos.

A la hora de comparar con el correspondiente espectro experimental, las distribuciones de energía calculadas de los protones disociados de las moléculas de  $\text{H}_2^+$  han sido convolucionadas con gaussianas cuyo ancho depende del coeficiente de rugosidad de la lámina ( $\rho = 12\%$ ) y de la resolución energética del detector experimental  $E_R = 0.3\%$  (apéndice D). Bajo las condiciones del

experimento, el mayor ensanchamiento proviene del efecto de la rugosidad de la lámina.

En la figura 3.25 mostramos las distribuciones de energía convolucionadas de los fragmentos disociados de las moléculas  $H_2^+$  saliendo en la dirección del haz de una lámina de aluminio de 359 a.u. de espesor [Denton *et al.* 2002]. En esta gráfica comparamos los resultados calculados con los experimentales, para diferentes energías incidentes. Hemos incluido los cálculos para ciertas fracciones de carga neutra,  $\phi_0$ , para determinar cuál ajusta mejor a las distribuciones experimentales. Todas las distribuciones han sido normalizadas a área unidad. Los círculos huecos corresponden a los datos experimentales de la figura 3.24 mientras que las líneas corresponden a la convolución de cálculos realizados con diferentes valores de  $\phi_0$ .

Podemos ver por los cálculos a altas energías que si la fracción de neutros es cero (todos los fragmentos son protones; línea continua en la figura 3.25), obtenemos unas distribuciones de energía con dos picos. Estos picos corresponden a los fragmentos que son retardados o acelerados debido a la repulsión coulombiana. Sin embargo, observamos que incluso para altas energías (101.8 keV/amu), la distribución experimental no muestra ninguna estructura con dos picos, como la obtenida con el cálculo de  $\phi_0 = 0$ . Esto es una fuerte indicación de que una fracción de neutros importante está presente a esta energía. Podemos observar que un cálculo con una fracción de neutros del 20 % da un ajuste razonable a los datos experimentales.

Para energías más bajas la fracción de neutros aumenta (tal como se deduce de la comparación en la figura 3.25 de los cálculos y los datos experimentales), por lo que el camino que recorren los dos fragmentos como  $H^+$  disminuye, y la acción de la repulsión coulombiana se reduce, llevando a distribuciones de energía más estrechas como se observa en la figura. Simultáneamente, hay un aumento de las partículas que de ninguna manera experimentan repulsión, incrementando la parte central de las distribuciones [Laubert y Chen 1978]. Tal como muestra la figura 3.25, este comportamiento está bien representado por los cálculos considerando valores de  $\phi_0$  más altos a medida que la energía disminuye. Mirando cuál es el mejor ajuste a los datos experimentales podemos derivar los valores de  $\phi_0$  representativos de la fracción de carga de fragmentos moviéndose a diferentes velocidades dentro del sólido.

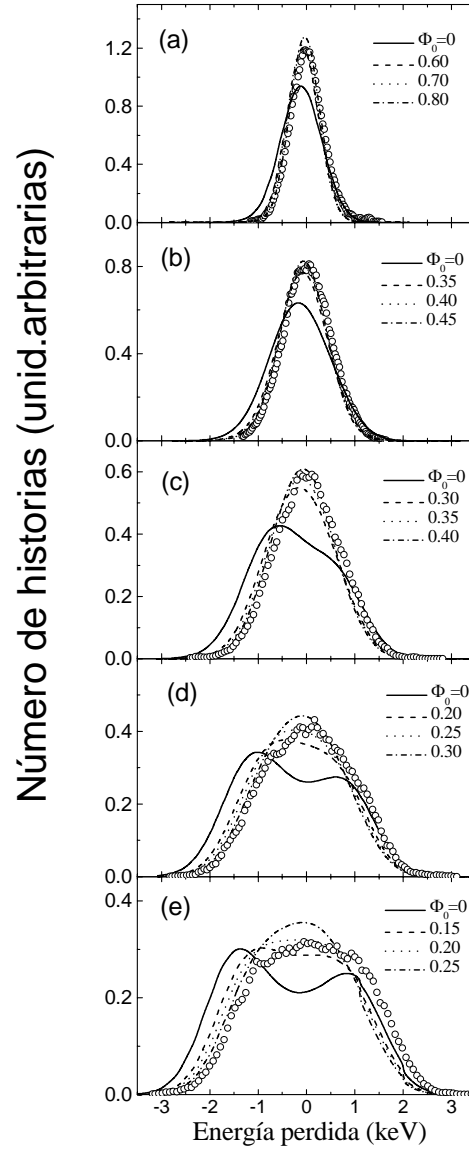


Figura 3.25: Distribuciones de energía de los protones disociados de iones  $H_2^+$ . Los círculos corresponden a los experimentales de la figura 3.24. Las curvas son los cálculos convolucionados; se han considerado diferentes valores de la fracción de carga neutra  $\phi_0$ . La energía del proyectil incidente  $E_0$  es: (a) 23.8 keV/amu, (b) 39.2 keV/amu, (c) 56.7 keV/amu, (d) 78.8 keV/amu y (e) 101.8 keV/amu.

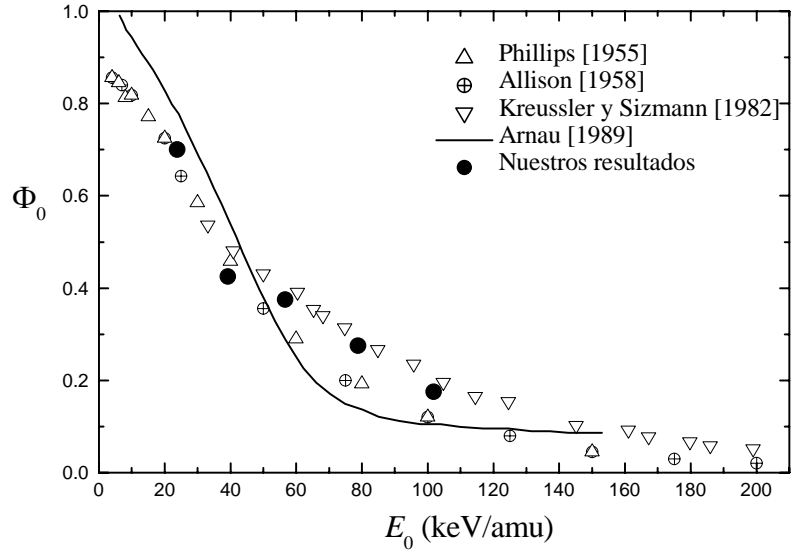


Figura 3.26: Fracción de carga neutra  $\phi_0$  para fragmentos de iones  $H_2^+$  en aluminio, en función de la energía del proyectil. Nuestros resultados de las simulaciones se muestran mediante símbolos rellenos. Otros valores experimentales se muestran mediante  $\triangle$  [Phillips 1955],  $\oplus$  [Allison 1958] y  $\nabla$  [Kreussler y Sizmann 1982]; la curva es la predicción teórica de Arnau [1989].

En la figura 3.26 mostramos los resultados de  $\phi_0$  para los fragmentos de la disociación de  $H_2^+$  en aluminio, obtenidos con este método, en función de la energía incidente del proyectil [Denton *et al.* 2002]. Además hemos incluido en la figura una estimación teórica de la fracción del estado neutro [Arnau 1989] y unos resultados experimentales [Phillips 1955, Allison 1958, Kreussler y Sizmann 1982] de la fracción de neutros cuando inciden protones en láminas de aluminio. Notamos que hay un buen acuerdo, dentro de la dispersión de los datos, de los valores de  $\phi_0$  obtenidos por nosotros con los diferentes métodos experimentales y teóricos. Las pequeñas discrepancias se pueden deber a los efectos de vecindad que un protón ejerce sobre el estado de carga del protón que le acompaña [de Castro Faria *et al.* 1986b].

En conclusión, hemos visto que es posible reproducir la forma de los espectros experimentales incluyendo en nuestro programa de simulación los estados de carga del proyectil dentro de la lámina, con sus correspondientes interacciones.

### 3.6.2. Energías intermedias

El aparato experimental usado aquí para la obtención del espectro de energías experimental ha sido descrito previamente [Fritz *et al.* 1994], y por eso sólo mencionaremos las características específicas más relevantes para la discusión posterior.

Un haz de iones  $H_2^+$  de 1 MeV incide en láminas del carbono con espesores que van desde 2 hasta 10  $\mu g/cm^2$ . Los espesores de las láminas se estimaron de las pérdidas de energía observadas de iones  $H^+$  a 0.5 MeV transmitidos a través de las láminas, y comparándolas con las tabuladas para el poder de frenado [Ziegler *et al.* 1985]. Los iones  $H^+$  resultado de la disociación de los iones  $H_2^+$  en la transmisión a través de la lámina, son recogidos y la energía analizada mediante un espectrómetro de sector magnético de  $90^\circ$ . El ángulo de aceptación del espectrómetro es  $0.02 \mu sr$  y la resolución energética del espectrómetro es 0.1 %. El coeficiente de rugosidad de la lámina es aproximadamente del 10 %.

Las interacciones que utiliza el código numérico usado aquí para seguir las trayectorias de los fragmentos son las mismas que las explicadas en el capítulo 1: frenado electrónico, pérdida y captura electrónica, efectos de vecindad electrónicos, dispersión nuclear y explosión coulombiana. Fuera del material los fragmentos sólo sienten la repulsión coulombiana cuando los dos salen como protones.

También hemos considerado aquí la posibilidad de que los fragmentos puedan capturar o puedan perder un electrón durante su recorrido en el blanco; el fragmento  $H^-$  es despreciable en el rango de energía estudiado aquí [de Castro Faria *et al.* 1986a, Echenique *et al.* 1990], así que sólo hemos considerado que los fragmentos pueden ser  $H^+$  y  $H^0$  (por lo que las correspondientes fracciones de carga satisfacen  $\phi_+ + \phi_0 = 1$ ). Para llevar a cabo este proceso en el código de simulación, hemos seleccionado el estado de carga de cada protón según el valor de la fracción de carga correspondiente a su velocidad. Cuando uno de los fragmentos está en el estado de carga neutro, las únicas interacciones que siente son la dispersión elástica con los núcleos del material y las fuerzas de frenado y de vecindad electrónica (apartado 1.2.1). No experimentan repulsión coulombiana y las fuerzas de vecindad electrónica son las propias del estado de carga neutro. También hemos asumido que una vez los fragmentos alcanzan la superficie de la lámina, continúan a través del vacío con el mismo estado de carga con que salieron hasta llegar al detector.

Para reproducir la situación experimental, sólo hemos contabilizado en

la simulación los protones que llegan al detector con ángulos menores que el ángulo de aceptación del espectrómetro y hemos convolucionado el cálculo de las distribuciones de pérdida de energía con una gaussiana cuya desviación estándar depende de la resolución energética del espectrómetro ( $E_R = 0.1\%$ ) y del coeficiente de rugosidad de la lámina ( $\rho = 10\%$ ).

Para probar la sensibilidad de nuestros cálculos a las fracciones de carga  $\phi_+$  y  $\phi_0$  hemos representado en la figura 3.27 las distribuciones de energía teóricas de los protones disociados de un haz de moléculas  $H_2^+$  de 1 MeV, recogidos por un detector después de atravesar una lámina de carbono amorfo de  $2.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de espesor [Abril *et al.* 2004]. Hemos dibujado las distribuciones de energía para tres valores distintos de la fracción de neutros:  $\phi_0 = 0$ , 0.005 y 0.01. Debido a que la neutralización de los fragmentos aumenta en el caso molecular en comparación con el caso de protones solos [de Castro Faria *et al.* 1986b], los valores usados en los cálculos son mayores que 0.0025, que es la fracción de neutros experimental para un haz de protones de 0.5 MeV en carbono amorfo [de Castro Faria *et al.* 1986a].

Los dos grandes picos en el espectro de energías de la figura 3.27 son debidos a la repulsión coulombiana (sobre todo a la salida de la lámina), y la asimetría en la altura es entendida en términos de la fuerza de vecindad electrónica, que tiende a alinear los fragmentos que viajan detrás del fragmento adelantado [García-Molina *et al.* 2000a]. Cuando  $\phi_0 = 0$  (todos los fragmentos son protones), la cantidad de protones que aparecen entre los dos grandes picos es producida mayormente por las colisiones del proyectil con los núcleos del blanco, que en parte anula el efecto alineador de las fuerzas de vecindad. Sin embargo, podemos ver que el pico central aumenta a medida que aumentamos la fracción de neutros, ya que los fragmentos neutros no experimentan la repulsión coulombiana ni dentro, ni fuera de la lámina.

Comparando los cálculos mostrados en la figura 3.27 con los datos experimentales correspondientes (figura 3.28a), hemos escogido el valor  $\phi_0 = 0.005$  como el valor que mejor ajusta a los datos experimentales. Será este valor el que utilizaremos para el cálculo de las distribuciones energéticas para todos los espesores empleados en los experimentos, puesto que todos tienen lugar a la misma energía.

En la figura 3.28 mostramos las distribuciones de energía de los protones resultantes de la disociación de un haz de moléculas  $H_2^+$  de energía 1 MeV, los cuales llegan al detector después de atravesar láminas de carbono amorfo de espesores entre 2 y  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  [Abril *et al.* 2004]. Las distribuciones experimentales (círculos huecos) y las calculadas (histogramas) están normalizadas.



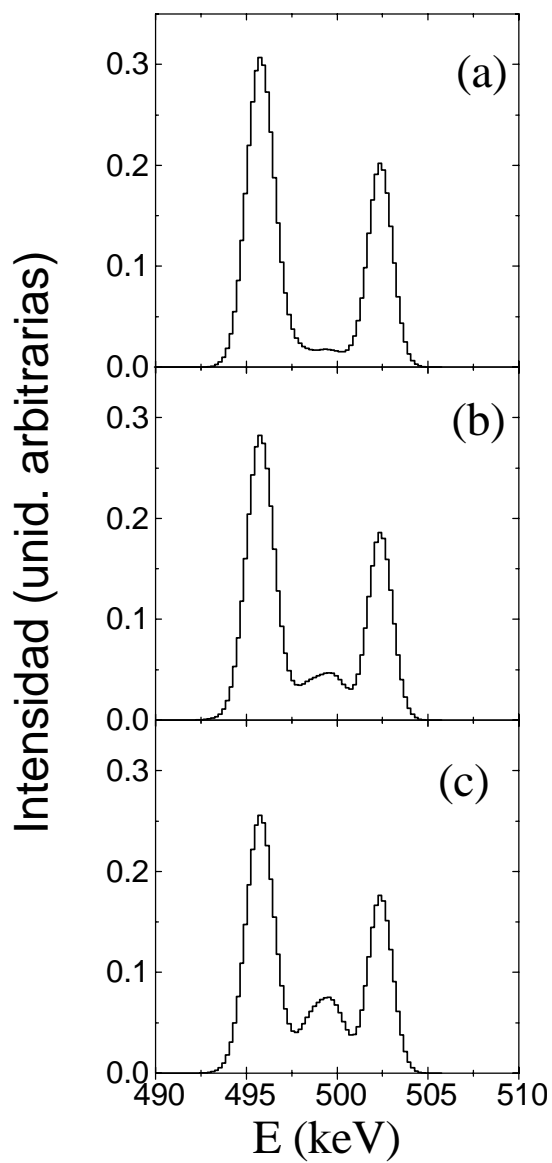


Figura 3.27: Distribución energética calculada para protones disociados de un haz de moléculas  $\text{H}_2^+$  a una energía de un 1 MeV, saliendo a ángulo cero después de atravesar una lámina de carbono amorfo de  $2.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de espesor. Tres fracciones de neutros han sido utilizadas: (a)  $\phi_0 = 0$ , (b)  $\phi_0 = 0.005$  y (c)  $\phi_0 = 0.01$ .

zadas a área unidad. Los picos coulombianos no son simétricos respecto de la energía de cada componente de la molécula (500 keV) porque, la fuerza coulombiana frena a un protón mientras acelera al otro haciendo que los dos protones tengan distinta velocidad y por tanto su frenado electrónico sea diferente. Para espesores de la lámina mayores vemos que la zona entre picos coulombianos se llena de fragmentos. Esto se puede atribuir a la mayor importancia de la dispersión nuclear para espesores grandes, que ensancha las distribuciones de ángulos. Vemos un pico central claramente definido para espesores pequeños, ya que para espesores grandes queda emmascarado por el efecto de la dispersión nuclear. Hemos interpretado este pico central como debido a los fragmentos que no han sufrido una repulsión coulombiana, o han sufrido esta repulsión en una pequeña fracción de su recorrido, debido a que su compañero ha capturado un electrón.

El ajuste entre las distribuciones de energía experimentales y calculadas es bastante bueno. Las pequeñas discrepancias en la altura de los picos coulombianos entre las distribuciones experimentales y calculadas pueden ser reducidas utilizando una aceptación angular mayor para los cálculos, que no cambia las otras características de las distribuciones teóricas. La razón es que aumentando la aceptación recogemos más parejas desalineadas que han sufrido menos los efectos de la fuerza de vecindad. El hecho que no hayamos realizado los cálculos con una aceptación teórica mayor se debe a que nos hemos querido ajustarnos al valor experimental de esta aceptación.

Esta discrepancia en la altura de los picos podría ser debida también al retraso de la señal del detector experimental cuando mide protones procedentes de la misma molécula original, que llegan en un intervalo temporal muy corto. El detector no podría diferenciar el protón mas retrasado, ya que su señal estaría superpuesta a la del protón más adelantado, haciendo que sólo el número de historias del pico coulombiano trasero disminuyera.

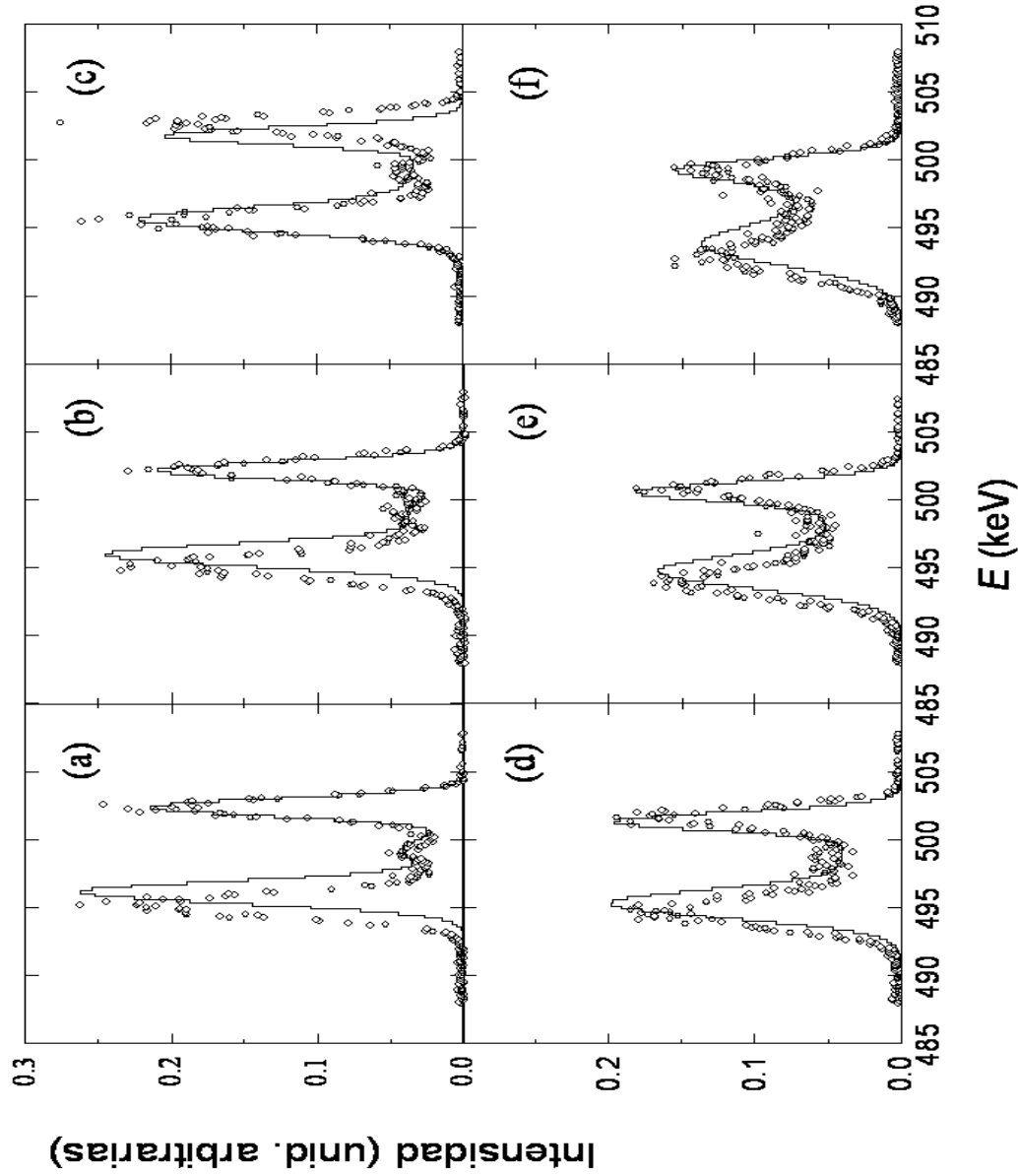


Figura 3.28: Distribución energética para protones disociados de un haz de moléculas  $\text{H}_2^+$  a una energía de un 0.5 MeV/amu, saliendo a ángulo cero después de atravesar una lámina de carbono amorfo de espesores: (a)  $2.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , (b)  $2.6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , (c)  $3.4 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , (d)  $4.35 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , (e)  $6.15 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  y (f)  $9.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Los círculos huecos son los datos experimentales y los histogramas los cálculos.

## Capítulo 4

### Tránsito de iones $\text{H}_3^+$

En el capítulo anterior hemos estudiado la interacción del ion molecular  $\text{H}_2^+$  con láminas delgadas. Después de comprobar que los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación comparan bastante bien con los obtenidos experimentalmente, vamos a estudiar el caso en que el proyectil que incide es el ion  $\text{H}_3^+$ , que es el siguiente ion molecular más sencillo. Aunque un caso relativamente simple de estudiar, el ion molecular  $\text{H}_3^+$  tiene un gran interés para el análisis tanto de los efectos propios del tránsito de iones moleculares como de los efectos propios de la correlación de sus fragmentos disociados [Ray *et al.* 1992, Denton *et al.* 1996, Pérez-Pérez *et al.* 1997].

Vamos a continuar con los estudios realizados por nuestro grupo de investigación sobre el frenado del ion  $\text{H}_3^+$  en láminas delgadas [Denton 1997]. En este caso vamos a ir más allá de un estudio analítico del frenado de esta molécula según su orientación, y vamos a desarrollar un programa de simulación que nos permita realizar el seguimiento detallado del movimiento del ion molecular  $\text{H}_3^+$ , y, después, de cada uno de los constituyentes en los que se disocia; de este modo obtendremos las distribuciones de posiciones y energías de los fragmentos disociados del ion molecular después de atravesar láminas delgadas y podremos compararlas con los correspondientes resultados experimentales. Como para esta molécula no se dispone de muchos datos experimentales, nos restringiremos también, al igual que para el caso del ion  $\text{H}_2^+$ , a láminas de carbono amorfo y de aluminio.

Cuando estudiamos la transmisión a través de láminas delgadas del ion molecular  $\text{H}_2^+$  a distintas energías, vimos que este ion molecular se disociaba al poco tiempo de entrar en la lámina en fragmentos atómicos y que luego éstos

interaccionaban entre sí durante su viaje a través de la lámina. Pero para altas energías, una gran parte de los iones moleculares originales sobrevivían después de atravesar la lámina y otras veces eran los fragmentos los que se recombinaban para formar de nuevo el ion original  $H_2^+$ .

Pero hay muchas diferencias entre el tránsito de iones  $H_2^+$  e iones  $H_3^+$ . La primera gran diferencia entre la molécula de  $H_3^+$  y la de  $H_2^+$ , anteriormente estudiada, es que la primera es plana, mientras que segunda es lineal, por lo que la molécula de  $H_3^+$  ofrece la posibilidad de investigar efectos relacionados con su particular orientación molecular.

Una segunda diferencia es que la recombinación para el ion molecular  $H_3^+$  es poco probable. Como mucho, la fracción transmitida de iones  $H_3^+$  recombinados sería del orden del cuadrado de la fracción de recombinados correspondiente al ion  $H_2^+$ , ya que la recombinación de  $H_3^+$  implicaría la captura de dos electrones del medio. En consecuencia, la fracción de iones  $H_3^+$  recombinados es despreciable [Cue *et al.* 1979a], por lo que en nuestros cálculos consideraremos que todos los iones  $H_3^+$  transmitidos son iones originales, incluso para tiempos de tránsito grandes.

Esto representa una ventaja frente a los cálculos hechos para el ion  $H_2^+$ , ya que podremos estudiar la vida media del ion molecular  $H_3^+$  para un rango de tiempos mucho más grandes. El único inconveniente es que para tiempos de tránsito grandes la fracción de iones  $H_3^+$  transmitidos es muy baja. Además, se puede comparar a bajas energías el frenado teórico de iones  $H_3^+$  sin disociar con el frenado experimental, sin temer que los iones  $H_3^+$  transmitidos experimentalmente sin disociar sean recombinados, cuyo frenado no es propio del ion molecular sin disociar.

Otra diferencia con la molécula de  $H_2^+$  es que cuando los iones  $H_3^+$  inciden en una lámina de un material, cierta fracción de ellos se disocia en iones  $H_2^+$ . Para tiempos de tránsito suficientemente largos se puede obtener una gran cantidad de estos iones  $H_2^+$  a la salida de la lámina. Los iones  $H_2^+$  son productos de la disociación del  $H_3^+$  o una recombinación de fragmentos  $H^+$ . La disociación del ion  $H_3^+$  en  $H_2^+$  puede tener lugar mediante dos procesos: (1)  $H_3^+ \rightarrow H_2^+ + H^+ + e^-$  o (2)  $H_3^+ \rightarrow H_2^+ + H^0$ . La recombinación del  $H_2^+$  se explica por la disociación de éste en protones, que junto con el protón procedente de la disociación del  $H_3^+$ , pueden volverse a reagrupar en un ion  $H_2^+$  de la misma manera que en el capítulo anterior, por lo que no lo trataremos de nuevo en este capítulo.

Veremos que el espectro de energías de los iones  $H_2^+$ , procedentes de la disociación y la recombinación anteriores, presentará tres picos. Los dos picos

más externos son el resultado de la repulsión coulombiana entre los fragmentos  $\text{H}_2^+$  y  $\text{H}^+$  que resultan de la disociación del tipo (1), en cambio el pico central se debe a la falta de esta repulsión en la disociación del tipo (2). Pero no sólo la repulsión coulombiana tiene lugar en estos procesos, sino que hemos de tener en cuenta los efectos de vecindad mientras viajan por la lámina los productos de la disociación, es decir entre el  $\text{H}_2^+$  y el  $\text{H}^+$  o entre el  $\text{H}_2^+$  y el  $\text{H}^0$ . Los procesos de transmisión original y recombinación del  $\text{H}_2^+$ , después de resultar de la disociación del  $\text{H}_3^+$ , pueden verse influidos por la proximidad del fragmento vecino  $\text{H}^+$  o  $\text{H}^0$ .

Hemos dicho anteriormente que cierta fracción de iones  $\text{H}_3^+$  se disocia en iones  $\text{H}_2^+$ , pero la otra fracción se disocia completamente en protones. Es más, también llegamos a la disociación completa del  $\text{H}_3^+$  a través de la disociación de iones  $\text{H}_3^+$  en iones  $\text{H}_2^+$ , si a su vez estos últimos se dividen en sus protones.

Una vez que el ion  $\text{H}_3^+$  está totalmente disociado y ha perdido todos sus electrones de ligadura, los fragmentos quedan cargados positivamente, experimentando una repulsión coulombiana. Esta repulsión será la principal causa de la separación de los fragmentos y su desviación de la trayectoria inicial del haz. Las colisiones de estos fragmentos con los núcleos de la lámina también contribuyen a que se pierda el movimiento correlacionado de los fragmentos, lo cual tiene las mismas consecuencias que la repulsión coulombiana, pero a las velocidades involucradas en este trabajo estas consecuencias son de menor orden.

En un primer apartado estudiaremos la geometría inicial de los iones  $\text{H}_3^+$  y cómo la caracterizamos en nuestro programa de simulación. Seguidamente describiremos el tiempo de tránsito del ion molecular  $\text{H}_3^+$  sin disociar y cómo es su frenado electrónico. Después haremos un estudio de los nuevos efectos de vecindad que surgen entre los fragmentos disociados. Finalmente, compararemos las distribuciones de energía, de ángulo y de distancias internucleares de los fragmentos disociados obtenidas mediante nuestro programa de simulación, y sus correspondientes distribuciones experimentales.

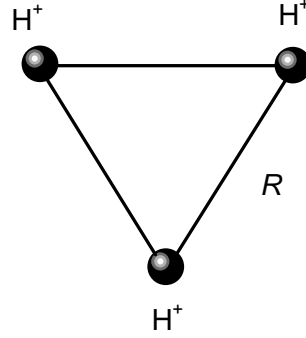


Figura 4.1: Dibujo esquemático del triángulo equilátero formado por los tres protones del ion molecular  $\text{H}_3^+$ . El triángulo viene definido por la distancia  $R$  de su lado.

## 4.1. Geometría inicial

Hay muchos estudios teóricos sobre la geometría inicial de la molécula de  $\text{H}_3^+$  que nos dicen que la configuración más estable es la de un triángulo equilátero [Gaillard *et al.* 1978b, Gemmell 1980], definida por la distancia de su lado  $R$  (figura 4.1). El valor de la distancia del lado del triángulo depende del estado excitado en el que se encuentre la molécula.

La figura 4.2 muestra la distribución de distancias del lado del triángulo en el nivel energético fundamental de la molécula de  $\text{H}_3^+$ , la cual se ajusta muy bien a una gaussiana con un valor medio próximo a  $R_0 = 1.71$  a.u. y con una desviación típica  $\sigma_0 = 0.18$  a.u. [Lammich 2001]. De todas formas, sabemos que desde el punto de vista experimental la molécula de  $\text{H}_3^+$  puede llegar a la lámina en un estado excitado dependiendo del tipo de acelerador que se haya empleado en cada experimento.

En algunos experimentos [Gemmell *et al.* 1975, Gaillard *et al.* 1978b, Miao *et al.* 1986] no se utiliza un anillo de enfriamiento después de acelerar la molécula, por lo que ésta llega excitada a la lámina y, por tanto, con una cierta distribución gaussiana para la distancia del lado del triángulo con un valor medio  $R \simeq 1.9$  a.u. mayor que  $R_0$  y con una desviación típica  $\sigma \simeq 0.4$  a.u. también mayor que  $\sigma_0$  [Gaillard *et al.* 1978b, Gemmell 1980].

Para caracterizar la geometría inicial de la molécula en nuestra simulación, utilizaremos la distribución más apropiada para cada experimento. Si el experimento ha sido realizado usando un método de enfriamiento para las

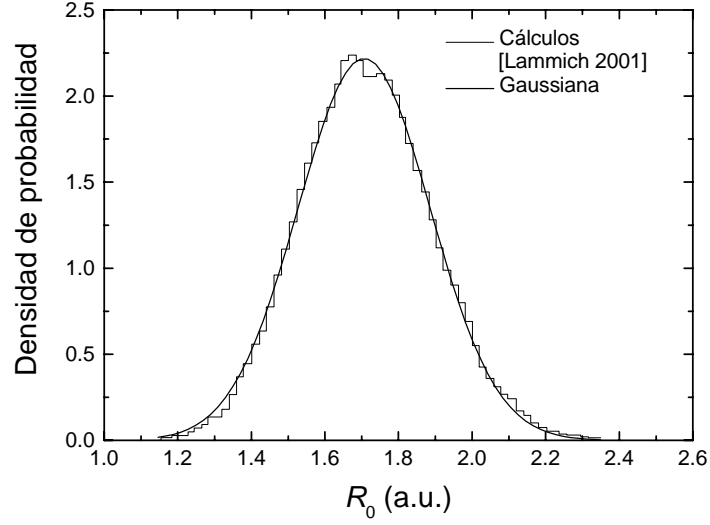


Figura 4.2: Distribución de distancias del lado del triángulo en el nivel energético fundamental de la molécula de  $\text{H}_3^+$ . La línea continua representa resultados experimentales [Lammich 2001], mientras que la línea discontinua corresponde a una gaussiana cuyo valor medio es  $R_0 = 1.71$  a.u. y cuya desviación típica es  $\sigma_0 = 0.18$  a.u.

moléculas después de ser aceleradas, utilizaremos la distribución gaussiana para el nivel fundamental ( $R_0 = 1.71$  a.u. y  $\sigma_0 = 0.18$  a.u.), mientras que si no se ha usado ningún método de enfriamiento utilizaremos la distribución gaussiana hallada experimentalmente para una molécula que llega excitada a la lámina ( $R \simeq 1.9$  a.u. y  $\sigma_0 \simeq 0.4$  a.u.) [Gaillard *et al.* 1978b].

Una vez conocida la distribución a utilizar, sortearemos la distancia del lado del triángulo según la distribución escogida. Después construimos el triángulo equilátero formado por los tres protones a partir de la distancia sorteada y obtenemos una orientación aleatoria de este triángulo a través del sorteo de los ángulos de Euler explicado en el apartado 2.1. Esta forma de caracterizar la molécula de  $\text{H}_3^+$  incidente (mediante la separación internuclear y la orientación del triángulo) se repite con cada una de las historias que ejecuta el programa de simulación.



## 4.2. Vida media

Hemos dicho en la introducción del capítulo que una de las principales diferencias entre la transmisión del  $H_3^+$  y del  $H_2^+$  es que no se produce una recombinación para el ion molecular  $H_3^+$  [Cue *et al.* 1979a]. Entonces la ecuación (3.2) para el caso del ion  $H_3^+$  sólo tendrá sentido para el primer término de la derecha, quedando de la forma:

$$Y_3(t) = \exp(-t/\tau_3), \quad (4.1)$$

donde  $\tau_3$  es la vida media del ion molecular  $H_3^+$ .

Si escribimos esta vida media en función de la sección eficaz de disociación,  $\sigma_3$ , tenemos:

$$\tau_3 = \frac{1}{n\sigma_3 v}, \quad (4.2)$$

donde  $n$  y  $v$  son la densidad atómica del blanco y la velocidad del proyectil, respectivamente. De este modo podemos describir la vida media de disociación, o simplemente la vida media, a partir de su sección eficaz. A su vez, esta sección eficaz total de disociación del ion será suma de las secciones eficaces de todos los tipos de disociación en las que decae el ion  $H_3^+$ .

Como hemos dicho en la introducción de este capítulo, una peculiaridad del tránsito de iones  $H_3^+$  es que una fracción de ellos se disocia en iones  $H_2^+$ . Este nuevo tipo de disociación la analizaremos también en este apartado. La disociación del ion  $H_3^+$  en el ion  $H_2^+$ , la describiremos a partir de su sección eficaz  $\sigma_{3 \rightarrow 2}$ , teniendo en cuenta que  $\sigma_3 \geq \sigma_{3 \rightarrow 2}$ , pues  $\sigma_3$  tiene más canales de disociación que  $\sigma_{3 \rightarrow 2}$ .

Las fracciones de iones  $H_3^+$  y  $H_2^+$  transmitidos en función del espesor  $z$  de la lámina para haces de moléculas  $H_3^+$  incidentes,  $Y_3(z)$  y  $Y_{3 \rightarrow 2}(z)$  respectivamente, satisfacen las ecuaciones diferenciales

$$\frac{dY_3(z)}{dz} = -n\sigma_3 Y_3(z), \quad (4.3)$$

$$\frac{dY_{3 \rightarrow 2}(z)}{dz} = n\sigma_{3 \rightarrow 2} Y_3(z) - n\sigma_2 Y_{3 \rightarrow 2}(z), \quad (4.4)$$

donde  $\sigma_2 = 1/(n\tau_2 v)$  y  $\tau_2$  son la sección eficaz de disociación total y la vida media los iones  $H_2^+$ , respectivamente. Si introducimos en las ecuaciones anteriores que la fracción inicial ( $z = 0$ ) de iones  $H_3^+$  es 1, tenemos,

$$Y_3(z) = \exp(-n\sigma_3 z), \quad (4.5)$$

$$Y_{3\rightarrow 2}(z) = \frac{\sigma_{3\rightarrow 2}}{\sigma_3 - \sigma_2} [\exp(-n\sigma_2 z) - \exp(-n\sigma_3 z)]. \quad (4.6)$$

Sustituyendo  $z = vt$  en la ecuación (4.2) podemos comprobar que la ecuación (4.5) coincide con la ecuación (4.1). También podemos escribir la ecuación (4.6) para una velocidad dada  $v$  en función del tiempo de tránsito y de una “vida media de disociación” del  $H_3^+$  en  $H_2^+$  tal que  $\tau_{3\rightarrow 2} \equiv 1/(n\sigma_{3\rightarrow 2}v)$ :

$$Y_{3\rightarrow 2}(t) = \frac{\tau_2\tau_3}{\tau_{3\rightarrow 2}(\tau_2 - \tau_3)} [\exp(-t/\tau_2) - \exp(-t/\tau_3)]. \quad (4.7)$$

En definitiva, estas operaciones nos sirven para concluir que la fracción de  $H_2^+$  transmitidos, procedentes de iones  $H_3^+$ , para cierto espesor  $z$  no decae simplemente como una exponencial, como es el caso del  $H_3^+$  (o del  $H_2^+$  cuando proceden de iones  $H_2^+$ ).

El valor para la vida media del  $H_3^+$  se obtiene ajustando a la ecuación (4.1) los resultados experimentales de la fracción transmitida de  $H_3^+$ , procedentes de iones  $H_3^+$  incidentes, en función del tiempo de tránsito. La vida media  $\tau_{3\rightarrow 2}$  se obtiene a partir de las figuras de la fracción transmitida de  $H_2^+$ , procedentes de iones  $H_3^+$  incidentes, en función del tiempo de tránsito. En este último caso ajustaremos a la ecuación (4.7) utilizando el valor de  $\tau_2 = 0.23$  fs encontrado en el capítulo anterior (supondremos que la vida media del ion  $H_2^+$  no queda modificada por viajar junto a un ion  $H^+$  o a un átomo  $H^0$ ).

En la figura 4.3 vemos los resultados experimentales obtenidos por el grupo de Kyoto [Susuki *et al.* 1995] y por el grupo de Lyon [Cue *et al.* 1979a]. El experimento del grupo de Kyoto se realizó a altas velocidades ( $v = 19.6$  a.u.), por lo que los tiempos de tránsito en la lámina son mucho menores que los del grupo de Lyon, cuyo experimento se realizó para unas velocidades más bajas ( $v = 5.66$  a.u.). Al igual que pasaba para la vida media del ion  $H_2^+$  (apartado 3.2), los datos obtenidos por Cue y colaboradores son más imprecisos; al ser unos tiempos de tránsito grandes, el número de iones  $H_3^+$  recogido es muy pequeño.

Del ajuste de la ecuación (4.1) a sus resultados, los grupos experimentales francés y japonés obtuvieron los valores de  $\tau_3 = 0.118 \pm 0.013$  fs y de  $\tau_3 = 0.13 \pm 0.02$  fs, respectivamente. Los resultados obtenidos por los dos grupos son bastante parecidos y sus errores solapan las diferencias; pero, el hecho de que el valor de la vida media obtenido por Susuki es mucho más reciente y que sus datos ajustan mejor a una exponencial, hace que nos quedemos con este último valor para utilizarlo en nuestro programa de simulación.

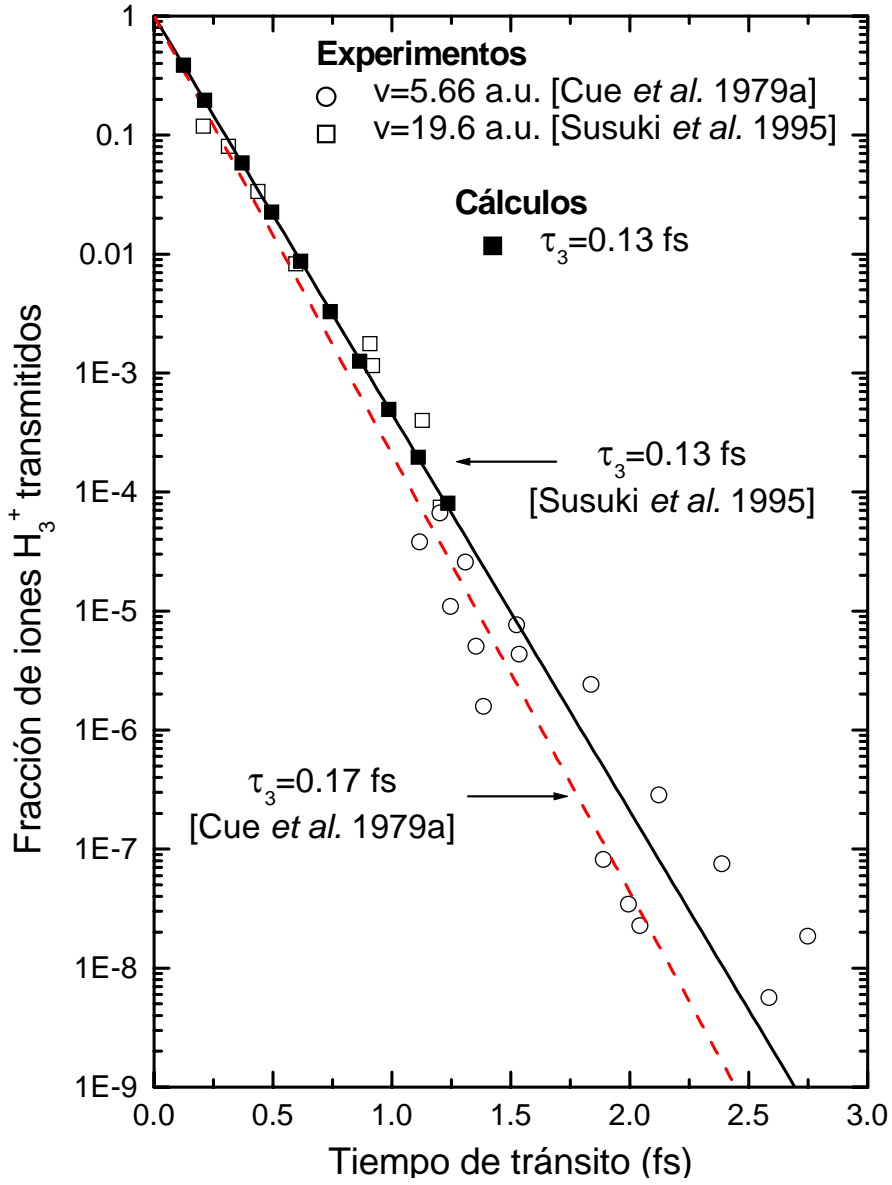


Figura 4.3: Fracción de iones  $H_3^+$  transmitidos en láminas de carbono para un haz incidente de iones  $H_3^+$ , en función del tiempo de tránsito. Las líneas son ajustes a los datos experimentales (representados por □ [Susuki *et al.* 1995] y ○ [Cue *et al.* 1979a]). Los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación para un valor de  $\tau_3 = 0.13$  fs están representados por ■.

En la figura 4.3 hemos añadido las fracciones de iones  $H_3^+$  transmitidos obtenidas con nuestra simulación, empleando el valor  $\tau_3 = 0.13$  fs obtenido por Susuki *et al.* [1995]. Evidentemente, obtenemos de nuestro cálculo unos resultados para la fracción de iones que corresponden perfectamente al ajuste hecho por Susuki *et al.* [1995] a sus datos.

Vemos que el comportamiento del ion  $H_3^+$  es muy parecido al del ion  $H_2^+$  (apartado 3.2), salvo en la magnitud de la vida media, donde notamos que  $\tau_2 \simeq 2\tau_3$ , salvo errores experimentales. Es más, sabemos por la bibliografía [Cue *et al.* 1979a] que  $\tau_2 \simeq \tau_1$ , donde  $\tau_1 = 0.21 \pm 0.1$  fs es la vida media del átomo de hidrógeno  $H^0$  para la misma velocidad y para el mismo material. Esto confirma que la vida media es inversamente proporcional a la probabilidad de disociación y que puede caracterizarse en términos de los electrones de la molécula. Cue *et al.* [1980a] demostraron que las vidas medias de proyectiles atómicos y moleculares con uno o dos electrones son parecidas a las vidas medias  $\tau_2$  y  $\tau_3$ , respectivamente.

Ahora vamos a centrarnos en la disociación de iones  $H_3^+$  en iones  $H_2^+$ . Para calcular el valor de la vida media  $\tau_{3 \rightarrow 2}$  hemos de fijarnos en la fracción de iones  $H_2^+$  transmitidos procedentes de iones  $H_3^+$ . No sólo eso, hemos de fijarnos en esta fracción para tiempos de tránsito pequeños,  $t \leq 1.5$  fs, porque para tiempos de tránsito suficientemente grandes el proceso de recombinación de iones  $H_2^+$  se hace predominante.

Para hallar  $\tau_{3 \rightarrow 2}$  podemos operar de dos formas diferentes. Primero podemos hacer un ajuste, según la ecuación (4.7), a la fracción experimental de iones  $H_2^+$  transmitidos procedentes de iones  $H_3^+$  de la figura 4.4 y obtener el valor  $\tau_{3 \rightarrow 2}$ . Por otro lado, también podemos emplear en nuestro programa de simulación un valor cualquiera para la vida media de la disociación del ion  $H_3^+$  en el ion  $H_2^+$ , y después ir modificándolo para ver con qué valor de esta vida media obtenemos unas fracciones que se aproximan mejor a los datos obtenidos experimentalmente.

La figura 4.4 presenta las fracciones de  $H_2^+$  transmitidos a través de láminas de carbono amorfo obtenidas por los investigadores de Lyon [Cue *et al.* 1979a] y de Kyoto [Susuki *et al.* 1995]. De nuevo vemos que los tiempos de tránsito para el grupo de Kyoto son menores que los del grupo de Lyon, dadas las energías a las que trabajan. Los resultados obtenidos por los grupos experimentales ajustando sus datos a la ecuación (4.7) son  $\tau_{3 \rightarrow 2} = 0.72 \pm 0.01$  fs para el grupo de Kyoto y de  $\tau_{3 \rightarrow 2} = 1.08 \pm 0.01$  fs para el grupo de Lyon. El valor anterior que implementado en el programa de simulación da unas fracciones teóricas de transmitidos más próximas a los resultados experimentales

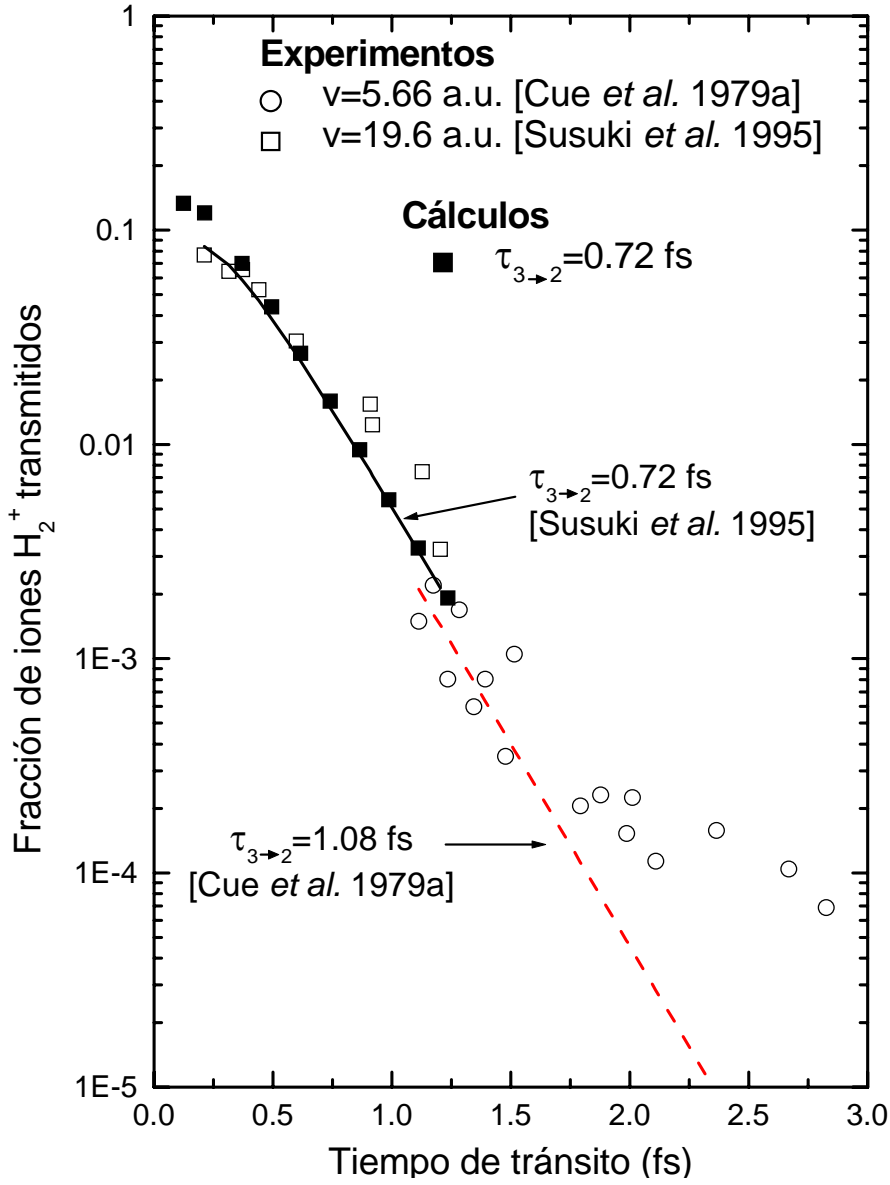


Figura 4.4: Fracción de iones  $H_2^+$  transmitidos en láminas de carbono para un haz incidente de iones  $H_3^+$ , en función del tiempo de tránsito. Las líneas son ajustes a los datos experimentales (representados por □ [Susuki *et al.* 1995] y ○ [Cue *et al.* 1979a]). Los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación para un valor de  $\tau_{3 \rightarrow 2} = 0.72$  fs están representados por ■.

es  $\tau_{3 \rightarrow 2} = 0.72$  fs.

Como el cálculo de nuestra simulación para el valor obtenido por Susuki *et al.* [1995] da mejores resultados, y al ser éste el experimento más reciente y con tiempos de tránsito menores, nos lleva a considerar el valor de  $\tau_{3 \rightarrow 2}$  deducido de los experimentos del grupo de Kyoto como el definitivo para usarlo en nuestra simulación y hacer cálculos posteriores.

### 4.3. Frenado electrónico del ion $H_3^+$

Hay muchos trabajos sobre la pérdida de energía de los protones disociados procedentes de iones moleculares de hidrógeno, para estudiar que el frenado no es propiamente el encontrado en el caso de protones solos; la diferencia radica en los “efectos de vecindad” que surgen porque cada fragmento perturba a sus vecinos a través de las excitaciones electrónicas que induce en el sólido [Brandt *et al.* 1974, Tape *et al.* 1976, Steinbeck *et al.* 1978, Ray *et al.* 1992]. Sin embargo, hay muy pocos trabajos para estudiar el frenado de los iones moleculares antes de disociarse. Sólo recientemente se han publicado datos experimentales [Susuki *et al.* 1995] y cálculos teóricos [Kaneko 1994, 1995, 1996]. El principal objetivo de este apartado es el cálculo teórico del frenado electrónico de la molécula de  $H_3^+$  a primer orden de la aproximación de Born y la comparación con los resultados teóricos y experimentales ya publicados.

Al igual que para el caso del  $H_2^+$ , se sabe que los electrones ligados al núcleo molecular del  $H_3^+$  reducen el poder de frenado significativamente [Kaneko 1991]. Para el cálculo del frenado electrónico de la molécula de  $H_3^+$  utilizaremos de nuevo el formalismo dieléctrico con la misma función dieléctrica usada en el frenado del ion  $H_2^+$ . Las fórmulas del formalismo dieléctrico utilizadas aquí son las mismas que las utilizadas en el capítulo anterior, pero ahora substituiremos la densidad de carga del ion  $H_2^+$  por la densidad de carga del ion  $H_3^+$ .

La densidad de carga estática del ion  $H_3^+$  vendrá definida por tres cargas puntuales  $Z_1$  en las posiciones  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  y  $\vec{c}$  respecto al centro del triángulo equilátero que forman (apartado 4.1) y una densidad electrónica  $2\rho_{el}(\vec{r}, t)$ . Si el lado del triángulo mide  $R$ , los vértices distan  $R/\sqrt{3}$  del centro (figura 4.5). Como en el ion  $H_3^+$  las cargas puntuales (protones) tienen la misma masa, el centro de masa estará situado en centro del triángulo, por lo que si el centro de masa del ion se mueve a una velocidad  $v$  en un medio frenante, tendremos

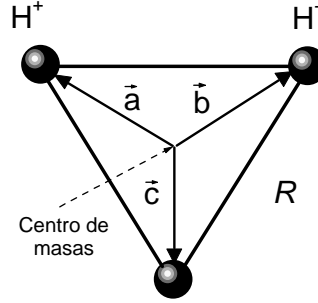


Figura 4.5: Coordenadas, en el espacio real, de las posiciones relativas de los protones que forman el ion molecular  $\text{H}_3^+$ .

que:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\vec{r}, t) = & Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{a}) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{b}) \\ & + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{c}) - 2\rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t). \end{aligned} \quad (4.8)$$

Ahora falta averiguar cuál es la densidad electrónica molecular del  $\text{H}_3^+$ . La densidad electrónica que utilizaremos en este trabajo es la del nivel fundamental del orbital molecular. Como el modelo gaussiano para el orbital molecular del ion  $\text{H}_2^+$  era el que mejor resultado daba para el cálculo variacional, volveremos a usar este modelo para el ion  $\text{H}_3^+$ . La densidad electrónica del ion  $\text{H}_3^+$  la forman dos electrones ligados en un estado fundamental formando un singlete molecular con spines opuestos. El orbital molecular gaussiano correspondiente a un electrón del singlete es una combinación lineal de orbitales atómicos gaussianos usado por Kaneko [1995]:

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = N_G [\varphi_G(\vec{r} - \vec{a}) + \varphi_G(\vec{r} - \vec{b}) + \varphi_G(\vec{r} - \vec{c})], \quad (4.9)$$

donde la función  $\varphi_G(\vec{r})$  normalizada es:

$$\varphi_G(\vec{r}) = \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/4} \exp(-\alpha r^2). \quad (4.10)$$

$\alpha$  es el parámetro orbital y  $N_G$  es el factor de normalización, que lo calculamos igualando a uno la densidad de carga.

El proceso a seguir es análogo al expuesto en la sección 3.3. Pimero hallamos el valor de  $N_G$ :

$$\int \rho_{\text{el}}(\vec{r}) d\vec{r} = 1 \Rightarrow \int N_G^2 \left[ \varphi_G(\vec{r} - \vec{a}) + \varphi_G(\vec{r} - \vec{b}) + \varphi_G(\vec{r} - \vec{c}) \right]^2 d\vec{r} = 1, \quad (4.11)$$

$$\begin{aligned} N_G^2 \left[ \int \varphi_G^2(\vec{r} - \vec{a}) d\vec{r} + \int \varphi_G^2(\vec{r} - \vec{b}) d\vec{r} + \int \varphi_G^2(\vec{r} - \vec{c}) d\vec{r} \right. \\ \left. + 2 \int \varphi_G(\vec{r} - \vec{a}) \varphi_G(\vec{r} - \vec{b}) d\vec{r} + 2 \int \varphi_G(\vec{r} - \vec{a}) \varphi_G(\vec{r} - \vec{c}) d\vec{r} \right. \\ \left. + 2 \int \varphi_G(\vec{r} - \vec{b}) \varphi_G(\vec{r} - \vec{c}) d\vec{r} \right] = 1. \end{aligned} \quad (4.12)$$

Como

$$\int \varphi_G(\vec{r} - \vec{a}) \varphi_G(\vec{r} - \vec{b}) d\vec{r} = \exp(-\alpha R^2/2), \quad (4.13)$$

la ecuación (4.12) da

$$N_G^2 [1 + 1 + 1 + 3 \times 2 \exp(-\alpha R^2/2)] = 1, \quad (4.14)$$

de donde se obtiene

$$N_G = \left\{ \frac{1}{3[1 + 2 \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}.$$

El cálculo variacional para la obtención de la distancia  $R$ , que está directamente relacionada con los vectores  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  y  $\vec{c}$ , para el nivel fundamental del ion  $H_3^+$  da un mínimo para  $R_m = 1.695$  a.u. con  $\alpha = 0.475$  a.u. y  $U(R_m) = -1.099$  a.u. [Kaneko 1995]. Si comparamos el valor de  $R_m$  hallado para nuestra densidad de carga con otros resultados de la bibliografía para el nivel fundamental, como el de  $R_0 = 1.654$  a.u. obtenido teóricamente por Farizon *et al.* [1991], vemos que es ligeramente más alto pero razonable debido al método simple empleado.

Una vez que sabemos cómo es la densidad de carga en el espacio real, vamos a calcular su transformada de Fourier para después introducirla en el formalismo dieléctrico. En primer lugar podemos separar la dependencia en  $\omega$  tal que

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{k}, \omega) = 2\pi \delta(\omega - \vec{k} \cdot \vec{v}) \rho_{\text{ext}}(\vec{k}),$$



y seguidamente calculamos la transformada de Fourier para las posiciones

$$\begin{aligned}\rho_{\text{ext}}(\vec{k}) &= \int d\vec{r} \rho_{\text{ext}}(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= \int d\vec{r} [Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{a}) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{b}) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{c}) - 2\rho_{\text{el}}(\vec{r})] e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{a}} + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{b}} + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{c}} - 2\rho_{\text{el}}(\vec{k}).\end{aligned}\quad (4.15)$$

El valor de la densidad de carga de un electrón en el espacio de Fourier,  $\rho_{\text{el}}(\vec{k})$ , es:

$$\begin{aligned}\rho_{\text{el}}(\vec{k}) &= \int d\vec{r} \phi_{\text{el}}^2(\vec{r}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= N_{\text{G}}^2 [e^{-i\vec{k}\vec{a}} \rho(k) + e^{-i\vec{k}\vec{b}} \rho(k) + e^{-i\vec{k}\vec{c}} \rho(k) \\ &\quad + 2\rho_i(\vec{k}, \vec{a}, \vec{b}) + 2\rho_i(\vec{k}, \vec{a}, \vec{c}) + 2\rho_i(\vec{k}, \vec{b}, \vec{c})].\end{aligned}\quad (4.16)$$

La  $\rho(k)$  es la densidad de carga en el espacio de Fourier correspondiente a la función de onda (3.11), ya calculada en el capítulo anterior, mientras que  $\rho_i(\vec{k}, \vec{a}, \vec{b})$  es:

$$\begin{aligned}\rho_i(\vec{k}, \vec{a}, \vec{b}) &= \int d\vec{r} \varphi_{\text{G}}(\vec{r} - \vec{a}) \varphi_{\text{G}}(\vec{r} - \vec{b}) e^{-i\vec{k}\vec{r}} \\ &= e^{-\alpha R^2/2} e^{-i\vec{k} \frac{\vec{a}+\vec{b}}{2}} \rho(k),\end{aligned}\quad (4.17)$$

y análogamente para  $\rho_i(\vec{k}, \vec{a}, \vec{c})$  y para  $\rho_i(\vec{k}, \vec{b}, \vec{c})$ . Por lo sustituyendo obtenemos finalmente  $\rho_{\text{el}}(\vec{k})$ :

$$\begin{aligned}\rho_{\text{el}}(\vec{k}) &= N_{\text{G}}^2 \rho(k) \left[ e^{-i\vec{k}\vec{a}} + e^{-i\vec{k}\vec{b}} + e^{-i\vec{k}\vec{c}} \right. \\ &\quad \left. + 2e^{-\alpha R^2/2} (e^{i\vec{k}\vec{a}/2} + e^{i\vec{k}\vec{b}/2} + e^{i\vec{k}\vec{c}/2}) \right]\end{aligned}\quad (4.18)$$

Para calcular el frenado electrónico de un ion molecular  $\text{H}_3^+$  que tiene una orientación aleatoria, elevamos  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$  al cuadrado y promediamos para todo ángulo entre  $\vec{k}$  y  $\vec{R}$ , obteniendo:

$$\begin{aligned}\langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}} &= 3\mathcal{A}^2(k) \left[ 1 + 2 \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + 3\mathcal{B}^2(k) \left[ 1 + 2 \frac{\sin(kR/2)}{kR/2} \right] \\ &\quad - 6\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \left[ \frac{\sin(\sqrt{3}kR/2)}{\sqrt{3}kR/2} + 2 \frac{\sin(kR/2)}{kR/2} \right],\end{aligned}\quad (4.19)$$

donde

$$\mathcal{A}(k) = Z_1 - \frac{2}{3}\mathcal{C}(k), \quad (4.20)$$

$$\mathcal{B}(k) = \frac{4}{3}e^{-\alpha R^2/2}\mathcal{C}(k) \quad (4.21)$$

y

$$\mathcal{C}(k) = \frac{e^{-k^2/8\alpha}}{1 + 2\exp(-\alpha R^2/2)}. \quad (4.22)$$

Si sustituimos  $\langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}}$  en la ecuación (1.1) utilizando la ELF calculada por nuestro grupo de investigación (capítulo 1), obtenemos el frenado electrónico del ion  $\text{H}_3^+$  para un modelo de orbitales atómicos gaussianos.

En la figura 4.6 puede observarse la comparación entre nuestro resultado (línea continua) y el obtenido por Kaneko [1995] para su ELF [Kaneko 1989] usando también un modelo de orbitales atómicos gaussianos (línea discontinua).

Al igual que para el caso del ion  $\text{H}_2^+$  (apartado 3.3), el uso de la ELF de Kaneko hace que el poder de frenado tenga un valor máximo más alto que para nuestra ELF, aunque a la misma velocidad. Para velocidades bajas nuestra ELF sigue dando valores más altos del poder de frenado, mientras que a velocidades altas tenemos aproximadamente los mismos resultados. Una forma de saber cuál de los resultados es el mejor, sería su posterior comparación con algún dato experimental, pero hay muy pocos experimentos realizados, sobre todo a bajas energías, que es donde radica la mayor diferencia entre los cálculos.

En la misma figura 4.6 adjuntamos el valor experimental obtenido por Susuki *et al.* [1995] para el frenado del ion  $\text{H}_3^+$  a una velocidad  $v = 19.6$  a.u., que no confirma ninguno de los cálculos anteriores. Además se dibuja, a título comparativo, el triple del frenado electrónico correspondiente a un solo protón. Vemos que este último cálculo que hemos añadido es mucho mayor que los otros dos anteriores para todas las velocidades. Esto es debido a que el frenado del ion molecular  $\text{H}_3^+$  sin disociarse es mucho menor que el de tres protones, a causa de sus dos electrones ligados.

Empleando la definición del straggling dada por la ecuación (1.3), y sustituyendo la densidad de carga dada por la ecuación (4.19), obtenemos el resultado representado en la figura 4.7.

Como aquí no disponemos de ningún resultado teórico o experimental para comparar, comparamos el resultado obtenido con el triple del straggling

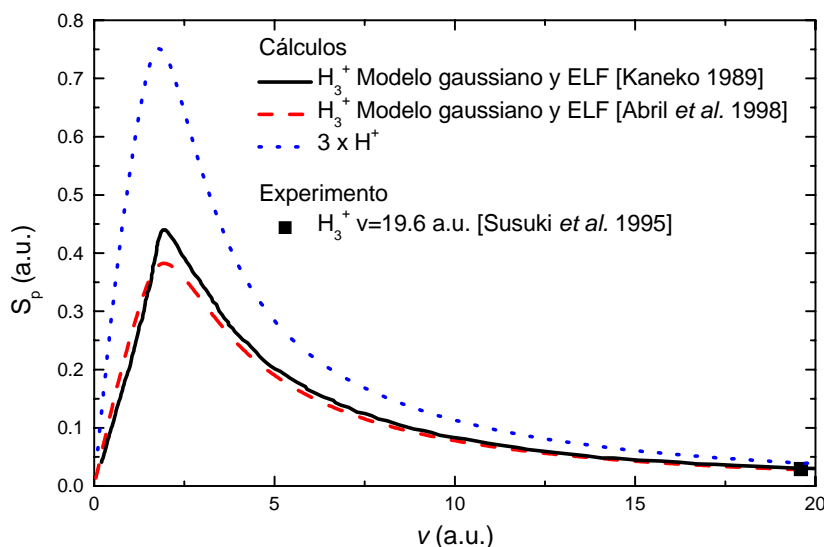


Figura 4.6: Poder de frenado electrónico del carbono amorfo para el ion  $H_3^+$ , en función de la velocidad. Se presentan los resultados correspondientes a tres cálculos diferentes: este trabajo (línea continua), Kaneko [1995] (línea discontinua) y el triple del poder de frenado correspondiente a un protón (línea punteada). El símbolo representa un resultado experimental a la velocidad de 19.6 a.u. [Susuki *et al.* 1995].

correspondiente a un solo protón. Vemos que este último es ligeramente mayor para todas las velocidades, pero hay que tener en cuenta que, en ambos casos, el straggling tiende a altas velocidades al straggling de Bohr para tres protones.

Hay más resultados experimentales para la transmisión de iones  $H_3^+$  en el caso de velocidades más bajas, pero se centran en la fracción de iones  $H_3^+$  transmitidos [Cue *et al.* 1979a] más que en la pérdida de energía, o en la fracción y espectros de energía de iones transmitidos procedentes de la disociación del  $H_3^+$  [Gaillard *et al.* 1976, Cue *et al.* 1979b]. Ya se hizo en el apartado anterior un estudio de la fracción de iones  $H_3^+$  y  $H_2^+$  transmitidos, mientras que el estudio de los espectros de energía de los iones disociados se hará en los últimos apartados de este capítulo. Antes, en el siguiente apartado, se estudiará un nuevo tipo de interacción que surge de la disociación del ion  $H_3^+$  en iones  $H_2^+$ .

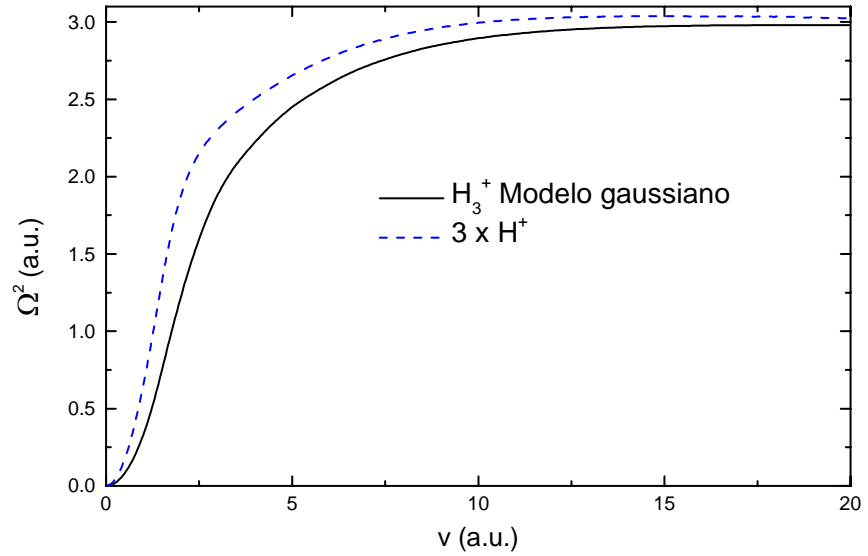


Figura 4.7: Straggling electrónico del carbono amorfo para el ion  $\text{H}_3^+$ , en función de la velocidad. Cálculos realizados en este trabajo (línea continua) y triple del straggling de un protón (línea discontinua).

#### 4.4. Efectos de vecindad $\text{H}_2^+-\text{H}^+$

Cuando se estudia el frenado de iones moleculares se sabe que al poco tiempo de entrar en contacto con el medio material, pierden sus electrones de enlace y se disocian en los iones que lo forman (tal como se comenta en la introducción del capítulo). Entre los iones disociados que viajan juntos aparecen nuevos fenómenos, llamados efectos de vecindad.

En este apartado vamos a estudiar los efectos de vecindad electrónicos que se producen entre un ion  $\text{H}_2^+$  y un ion  $\text{H}^+$  procedentes de la disociación de un ion  $\text{H}_3^+$ . Estos iones disociados interactúan entre ellos a través del campo inducido en los electrones del material. Como es un fenómeno debido al medio electrónico del material lo estudiaremos a partir del formalismo dieléctrico. Utilizaremos las fórmulas de las fuerzas de vecindad electrónica, ecuaciones (1.11) y (1.12), obtenidas para el cálculo de los efectos de vecindad entre átomos de hidrógeno [Barriga-Carrasco 2000]. Pero esta vez utilizaremos las densidades de carga del ion molecular  $\text{H}_2^+$  halladas en el apartado 3.3.

La densidad de carga del ion  $\text{H}_2^+$  que utilizaremos en este apartado es la

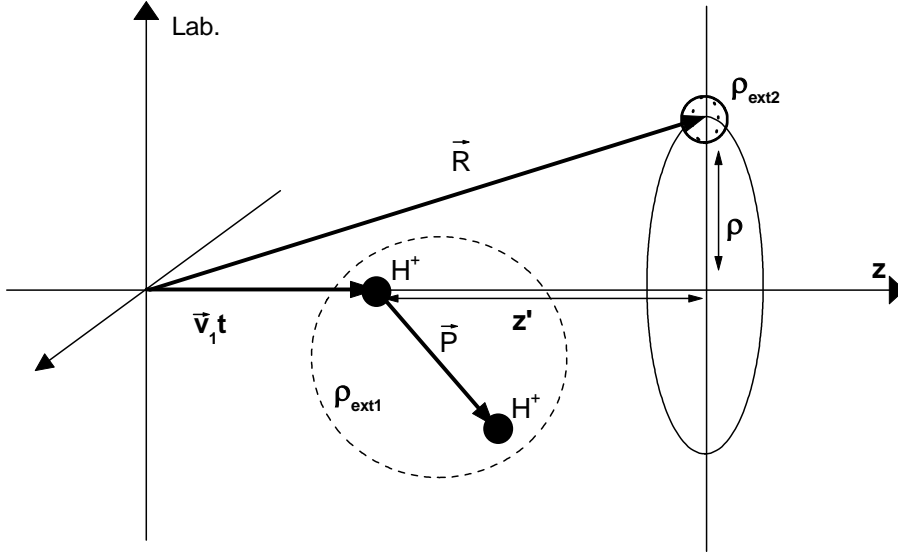


Figura 4.8: Coordenadas en el espacio real de las posiciones relativas de la densidad de carga del  $H_2^+$  y  $H^+$ ,  $\rho_{\text{ext1}}$  y  $\rho_{\text{ext2}}$ , respectivamente. Ponemos el sistema de referencia en uno de los protones que forman el núcleo del ion molecular  $H_2^+$ .

de la ecuación (3.4), pero con una pequeña diferencia; situaremos el origen de coordenadas de nuestro sistema de referencia en uno de los protones que forman el ion  $H_2^+$  (figura 4.8). En este nuevo sistema de referencia la densidad de carga del ion  $H_2^+$  queda de la forma:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext1}}(\vec{r}, t) = & Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{P}) \\ & - \rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{P}/2), \end{aligned} \quad (4.23)$$

donde  $\vec{v}$  es la velocidad con la que se mueve el centro de masas del ion  $H_2^+$  en el medio electrónico y  $\vec{P}$  es el vector separación entre los dos protones que forman el núcleo del  $H_2^+$ . La densidad de carga electrónica está centrada a la mitad de la distancia internuclear.

Para el caso concreto del ion  $H_2^+$ , tenemos que  $Z_1 = 1$ , la densidad de carga electrónica  $\rho_{\text{el}}$  es un orbital molecular combinación lineal de orbitales atómicos gaussianos y el módulo de  $\vec{P}$  es constante e igual a  $P = 2.05$  a.u. (apartado 3.3).

Si escribimos la densidad de carga anterior, ecuación (4.23), en el espacio

de Fourier, nos queda, [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]

$$\rho_{\text{ext1}}(\vec{k}, \omega) = 2\pi\delta(\omega - \vec{k}\vec{v}) \rho_{\text{ext1}}(\vec{k}), \quad (4.24)$$

donde

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext1}}(\vec{k}) &= Z_1 + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{P}} \\ -N_G^2 \rho(k) &\left[ 1 + e^{-i\vec{k}\vec{P}} + 2e^{-i\vec{k}\vec{P}/2} e^{-\alpha P^2/2} \right]. \end{aligned} \quad (4.25)$$

$\rho(k)$  viene dado por ecuación (3.16) y

$$N_G = \left\{ \frac{1}{2[1 + \exp(-\alpha P^2/2)]} \right\}^{1/2}. \quad (4.26)$$

Ahora sólo nos hace falta encontrar la densidad de carga de los iones del átomo de hidrógeno. La transformada de Fourier en el espacio de la densidad carga total de un átomo hidrogenoide es [Barriga-Carrasco 2000]:

$$\rho_{\text{ext2}}(k) = \left[ Z_1 - \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{k}{2\alpha}\right)^2\right)^2} \right]. \quad (4.27)$$

En concreto, para el átomo de hidrógeno,  $H^0$ , sería  $Z_1 = 1$  y  $\alpha = 1$ ; y para el protón  $\rho_{\text{ext2}}(k) = 1$ . A partir de ahora, para simplificar el cálculo supondremos que las fuerzas de vecindad se producen entre un ion  $H_2^+$  y un protón  $H^+$ , cuyas densidades de carga son  $\rho_{\text{ext1}}$  y  $\rho_{\text{ext2}}$ , respectivamente.

Si analizamos las fórmulas de las componentes de las fuerzas de vecindad electrónica, que son paralela y perpendicular a la velocidad  $\vec{v}$ , respectivamente:

$$\begin{aligned} F_{z'}(z', \rho) &= \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_0(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ &\times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \sin(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ &\quad \left. + \cos(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\} \end{aligned} \quad (4.28)$$

$$\begin{aligned}
F_\rho(z', \rho) = & \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega J_1(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \\
& \times \rho_{\text{ext}1}(k) \rho_{\text{ext}2}(k) \left\{ \cos(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\
& \left. - \sin(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\} \quad (4.29)
\end{aligned}$$

lo primero que observamos es que  $z' = z - vt$  incluye la coordenada temporal (figura 4.8). Vemos además que las densidades  $\rho_{\text{ext}1}(k)$  y  $\rho_{\text{ext}2}(k)$  sólo dependen del módulo de  $\vec{k}$ , mientras que la  $\rho_{\text{ext}1}(\vec{k})$  hallada para el ion  $H_2^+$  depende del vector  $\vec{P}$ .

Sabemos que  $e^{-i\vec{k}\vec{P}}$  sólo implica un desplazamiento  $\vec{P}$  en el espacio real, por lo que podemos agrupar la  $\rho_{\text{ext}1}(\vec{k})$  de la siguiente manera [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$\begin{aligned}
\rho_{\text{ext}1}(\vec{k}) = & [Z_1 - N_G^2 \rho(k)] + [Z_1 - N_G^2 \rho(k)] e^{-i\vec{k}\vec{P}} \\
& - N_G^2 \rho(k) 2 e^{-\alpha P^2/2} e^{-i\vec{k}\vec{P}/2}. \quad (4.30)
\end{aligned}$$

Si descomponemos  $\vec{P}$  en sus coordenadas paralela  $P_\parallel$  y perpendicular  $P_\perp$  a la velocidad  $\vec{v}$ , y calculamos nuevamente las fuerzas de vecindad en sus componentes paralela y perpendicular, nos queda:

$$\begin{aligned}
F_{z'H_2^+-H^+}(z', \rho) = & F_{Iz'}(z', \rho) + F_{Iz'}(z' - P_\parallel, \rho - P_\perp) \\
& + 2 e^{-\alpha P^2/2} F_{IIz'}(z' - P_\parallel/2, \rho - P_\perp/2) \quad (4.31)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
F_{\rho H_2^+-H^+}(z', \rho) = & F_{I\rho}(z', \rho) + F_{I\rho}(z' - P_\parallel, \rho - P_\perp) \\
& + 2 e^{-\alpha P^2/2} F_{II\rho}(z' - P_\parallel/2, \rho - P_\perp/2) \quad (4.32)
\end{aligned}$$

donde  $F_{Iz'}$  y  $F_{I\rho}$  están calculadas para una densidad  $\rho_{\text{ext}1}(k) = Z_1 - N_G^2 \rho(k)$  y una densidad  $\rho_{\text{ext}2}(k) = 1$ , mientras que  $F_{IIz'}$  y  $F_{II\rho}$  están calculadas para una densidad  $\rho_{\text{ext}1}(k) = -N_G^2 \rho(k) 2 e^{-\alpha P^2/2}$  y una densidad  $\rho_{\text{ext}2}(k) = 1$ .

Consideramos que el módulo de  $\vec{P}$  es constante (hallado en el apartado 3.3) pero su orientación es arbitraria y, por lo tanto,  $P_\parallel$  y  $P_\perp$  no son constantes. Esto nos lleva a concluir que cada vez que tengamos que calcular las fuerzas de vecindad en nuestro programa de simulación tendremos que hacer un sorteo aleatorio de  $\vec{P}$  en todo el espacio de orientaciones.

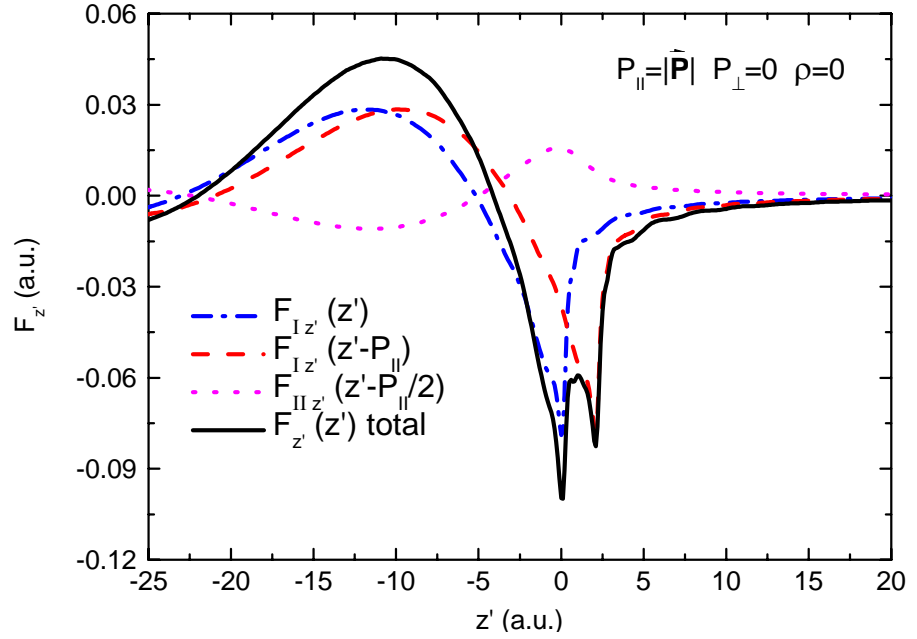


Figura 4.9: Sumandos y fuerza total en la dirección  $z'$ , según la ecuación (4.31), de la fuerza de interferencia entre un ion  $\text{H}_2^+$  y un  $\text{H}^+$  a una velocidad  $v = 5$  a.u. moviéndose a través de carbono amorfo. Las diferentes curvas están calculadas para  $\rho = 0$  y para el vector internuclear del ion  $\text{H}_2^+$  alineado con su velocidad (primer caso discutido en el texto).

A continuación comparamos los resultados para dos casos especiales en que  $v = 5$  a.u.,  $\rho = 0$  y  $z'$  varía desde  $-25$  hasta  $20$  a.u. En el primer caso hacemos  $P_{||} = |\vec{P}|$  y  $P_{\perp} = 0$ , es decir el vector internuclear del ion  $\text{H}_2^+$  está orientado en la dirección de su velocidad, y en el segundo caso hacemos  $P_{||} = 0$  y  $P_{\perp} = |\vec{P}|$ , es decir el vector internuclear del ion  $\text{H}_2^+$  es perpendicular a la velocidad de éste.

La fuerza  $F_{\rho_{\text{H}_2^+-\text{H}^+}}$  en el primer caso es cero ya que  $\rho = 0$  y  $P_{\perp} = 0$ , mientras que la fuerza  $F_{z'\text{H}_2^+-\text{H}^+}$  se muestra en la figura 4.9. En esta figura hemos dibujado los tres términos de la suma y el resultado de la ecuación (4.31). Vemos que el segundo término es igual que el primero pero desplazado  $2.05$  a.u. hacia  $z'$  positivas, como cabía esperar, mientras el tercero tiene un valor positivo de  $F_{IIz'}$  en  $z' = 0$  debido a que  $\rho_{\text{ext}1}$  es negativa. La suma total, es decir  $F_{z'\text{H}_2^+-\text{H}^+}$ , nos da una gráfica característica con dos mínimos relativos



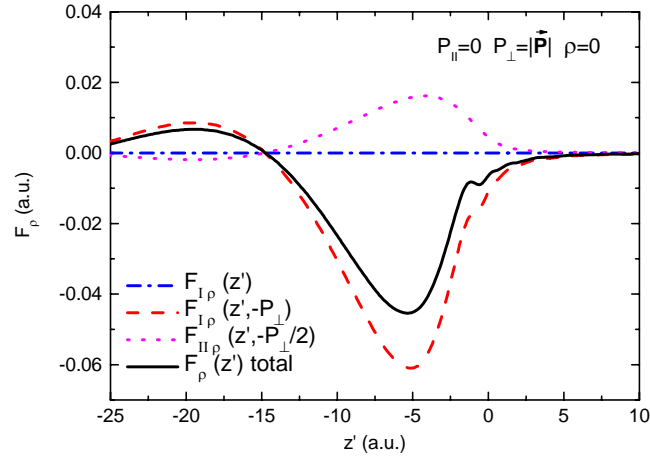


Figura 4.10: Sumandos y fuerza total en la dirección  $\rho$ , según la ecuación (4.32), de la fuerza de interferencia entre un ion  $H_2^+$  y un  $H^+$  a una velocidad  $v = 5$  a.u. moviéndose a través de carbono amorfo. Las diferentes curvas están calculadas para  $\rho = 0$  y para el vector nuclear del ion  $H_2^+$  perpendicular con su velocidad (segundo caso discutido en el texto).

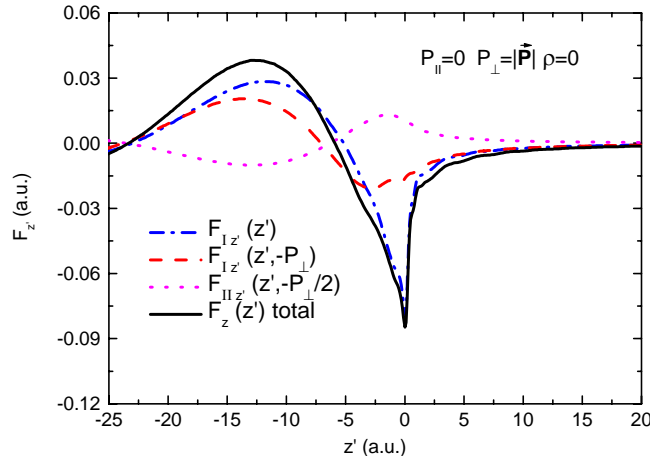


Figura 4.11: Sumandos y fuerza total en la dirección  $z'$ , según la ecuación (4.31), de la fuerza de interferencia entre un ion  $H_2^+$  y un  $H^+$  a una velocidad  $v = 5$  a.u. moviéndose a través de carbono amorfo. Las diferentes curvas están calculadas para  $\rho = 0$  y para el vector nuclear del ion  $H_2^+$  perpendicular con su velocidad (segundo caso discutido en el texto).

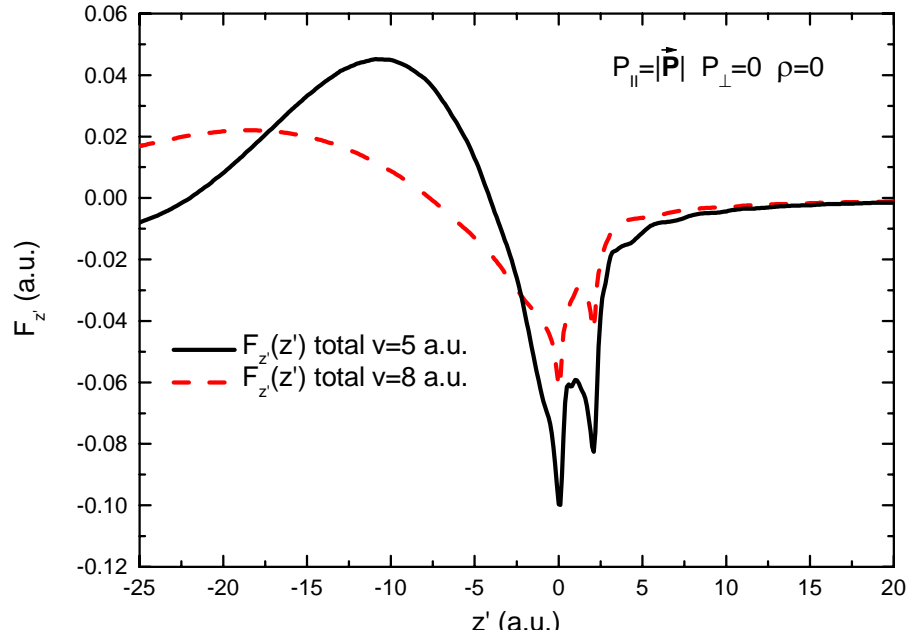


Figura 4.12: Fuerza de interferencia en la dirección  $z'$ , según la ecuación (4.31), entre un ion  $\text{H}_2^+$  y un  $\text{H}^+$  que viajan en carbono amorfo, para dos velocidades:  $v = 5$  y  $v = 8$  a.u. Las dos curvas están calculadas para  $\rho = 0$  y para el vector internuclear del ion  $\text{H}_2^+$  paralelo a su velocidad (primer caso discutido en el texto).

en  $z' = 0$  y en  $z' = 2.05$  a.u.

Ahora vamos a estudiar el segundo caso. Lo primero a destacar es que la fuerza perpendicular total  $F_{\rho\text{H}_2^+-\text{H}^+}$  no es cero (figura 4.10), ya que, aunque  $\rho = 0$ , la componente perpendicular del vector internuclear es  $P_{\perp} = |\vec{P}|$ , lo que hace que el primer término de la suma de la ecuación (4.32) sí que sea cero, pero los demás no. Por otro lado, podemos analizar la componente paralela de la fuerza de vecindad del segundo caso (figura 4.11). Al compararla con el primer caso, vemos que la fuerza que corresponde al primer sumando de la ecuación (4.31) es igual en los dos casos. Vemos también que la fuerza correspondiente al segundo sumando no equivale a un desplazamiento de la fuerza del primer sumando, ya que la componente paralela del vector internuclear es cero. Para la fuerza correspondiente al tercer sumando notamos que es la misma que en el primer caso, pero se encuentra desplazada un valor aproximado de  $z' = |\vec{P}|/2$  hacia  $z'$  negativas.

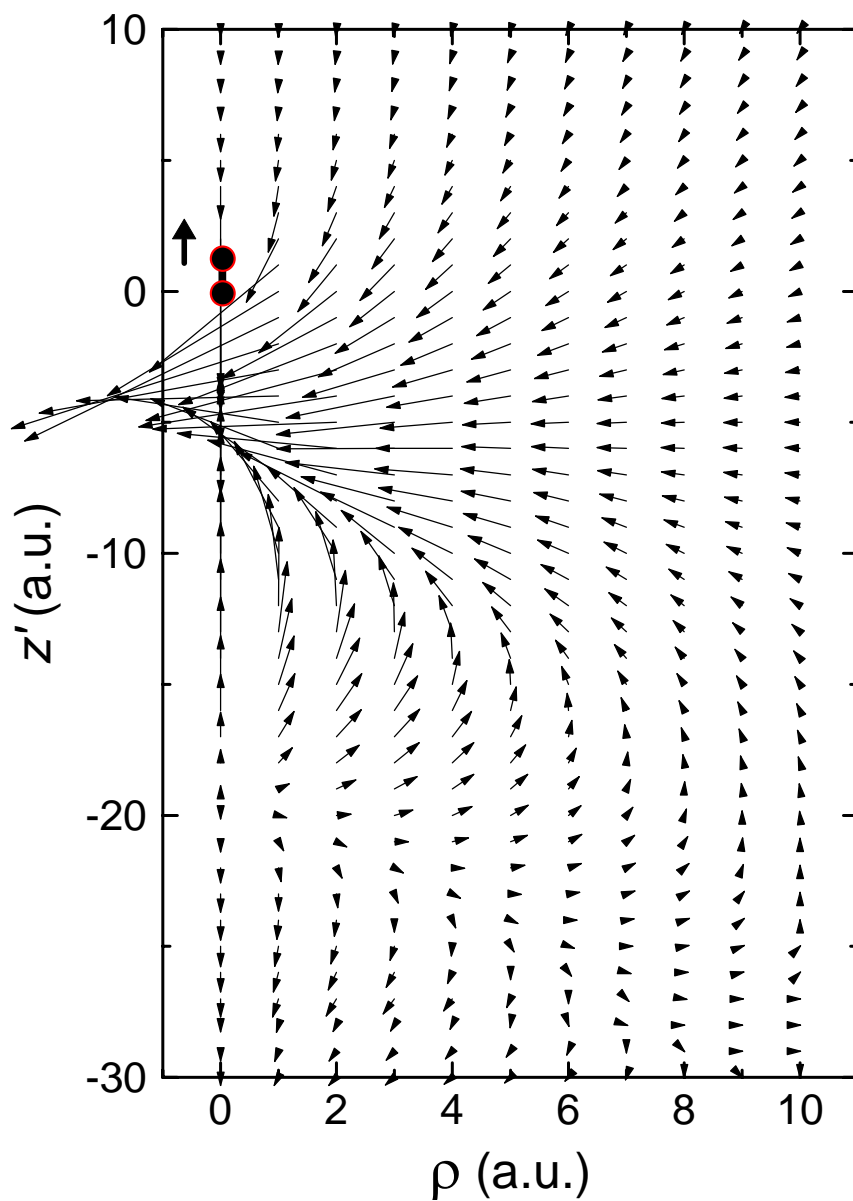


Figura 4.13: Fuerza que ejerce un ion  $\text{H}_2^+$ , situado en  $(z' = 0, \rho = 0)$  sobre un protón situado en  $(z', \rho)$ . El ion  $\text{H}_2^+$  se mueve en la dirección  $z'$  con una velocidad de 4.47 a.u. en carbono amorfo. Su vector internuclear está orientado en la dirección de su velocidad. El módulo de las fuerzas tiene una longitud arbitraria (idéntica a la figura 4.14).

Otro análisis que podemos hacer es el de ver cómo varían las fuerzas de vecindad electrónica en función de la velocidad. Para ello vamos a distinguir entre la fuerza de vecindad en la dirección paralela para el primer caso anterior, a velocidades  $v = 5$  y  $8$  a.u. Como apreciamos en la figura 4.12, la fuerza para la velocidad  $v = 8$  a.u. tiene la misma forma característica con dos mínimos que para la velocidad  $5$  a.u., pero de menor magnitud. También se aprecia que la oscilación de la fuerza a  $z'$  negativas es más amplia cuando la velocidad es mayor.

Por último vamos a dibujar la fuerza de vecindad entre el  $H_2^+$  y el protón en forma vectorial, cuando el vector internuclear del ion  $H_2^+$  es paralelo a su velocidad (figura 4.13). Para  $\rho = 0$  recuperamos los dos casos anteriores; toda la fuerza se dirige en la dirección  $z'$ .

Seguidamente comparamos la figura 4.13 [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003] con las halladas anteriormente para iones del átomo de hidrógeno [Barriga-Carrasco 2000]. En el caso de las fuerzas de vecindad entre dos protones, habría que sustituir en las ecuaciones (1.11) y (1.12) la  $\rho_{\text{ext1}}(k)$  y la  $\rho_{\text{ext2}}(k)$  por 1. Se puede observar en la figura 4.14a que la magnitud de las fuerzas es parecida a la de vecindad entre un ion  $H_2^+$  y un protón.

Igualmente se puede comparar con las fuerzas de vecindad entre un átomo de hidrógeno  $H^0$  y un protón  $H^+$  (figura 4.14b), donde  $\rho_{\text{ext1}}(k)$  será la de la ecuación (4.27) para  $Z_1 = 1$  y  $\alpha = 1$ , y la  $\rho_{\text{ext2}}(k)$  será otra vez 1. Pero vemos que la magnitud y la oscilación de estas fuerzas es mucho menor que para el caso del ion  $H_2^+$  y del protón que aquí nos concierne. Por esta última razón no será necesario comparar el caso de las fuerzas de vecindad entre un átomo  $H^0$  y otro átomo  $H^0$ .

## 4.5. Distribuciones de energía de iones $H_2^+$

Se ha dicho anteriormente que existen pocos resultados experimentales de la transmisión de iones  $H_3^+$ , y casi todos se centran en el estudio de la fracción de transmitidos y, hasta lo que nosotros conocemos, ninguno se centra en los espectros de energía o ángulos de los iones  $H_3^+$  transmitidos. Por otro lado, sí que se encuentran resultados experimentales de espectros de iones  $H_2^+$  procedentes de la disociación del ion  $H_3^+$ . Son estos espectros los que trataremos de reproducir en este apartado mediante nuestro programa de simulación.

En la introducción hemos comentado que una parte de los iones  $H_3^+$  se di-

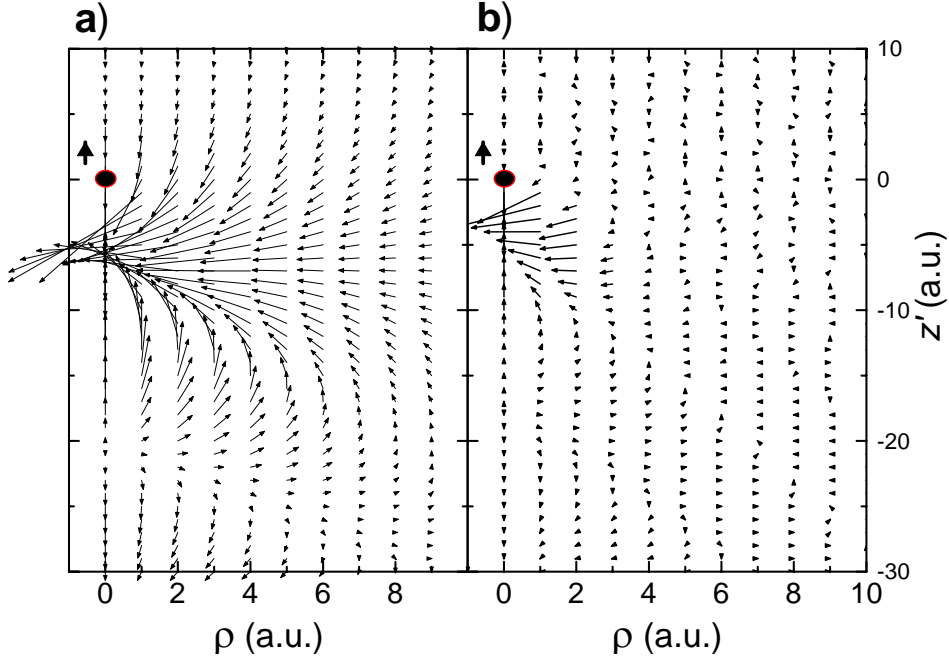


Figura 4.14: Fuerza que ejerce un protón  $H^+$ , situado en  $(z' = 0, \rho = 0)$  moviéndose en la dirección  $z'$  con una velocidad de 4.47 a.u. en carbono amorfo, sobre (a) un protón o (b) un átomo de hidrógeno, respectivamente, situado en  $(z', \rho)$ . El módulo de los vectores tiene una longitud arbitraria (idéntica a la figura 4.13).

socia en iones  $H_2^+$  más otros fragmentos. Hemos hallado en el primer apartado de este capítulo que la vida media de creación de iones  $H_2^+$  es  $\tau_{3 \rightarrow 2} = 0.72$  fs y como la vida media de disociación del  $H_3^+$  vale  $\tau_3 = 0.13$  fs, tenemos que la fracción de iones  $H_2^+$  procedentes de  $H_3^+$  es:

$$\frac{1/\tau_{3 \rightarrow 2}}{1/\tau_3} = 0.18$$

Pero eso no es todo. Como también hemos comentado en la introducción de este capítulo, la disociación del ion  $H_3^+$  en  $H_2^+$  puede ser de dos tipos: (1)  $H_3^+ \rightarrow H_2^+ + H^+ + e^-$  o (2)  $H_3^+ \rightarrow H_2^+ + H^0$ . Vamos a ver en este apartado que el espectro de energías de los iones  $H_2^+$  procedentes de la disociación y la recombinación anteriores presentará tres picos. Los dos picos más externos son el resultado de la repulsión coulombiana entre los fragmentos de la

disociación del tipo (1), en cambio el pico central se debe a la falta de esta repulsión en la disociación del tipo (2). Gracias a este espectro característico podemos incluso predecir *grosso modo* cuál es la fracción de disociados del tipo (1) y cuál es la fracción del tipo (2).

Cuando un ion  $H_3^+$  se disocia en un  $H_2^+$  y en un protón, éstos se repelen mutuamente debido a la fuerza coulombiana. Si suponemos que las colisiones nucleares son despreciables cuando no se trata de velocidades bajas, la tercera parte de la energía potencial al inicio de la disociación de la molécula de  $H_3^+$  se convierte en energía cinética de los fragmentos  $H_2^+ - H^+$  en el sistema centro de masas, a medida que la explosión coulombiana tiene lugar. Si  $E_d$  es la energía potencial inicial al disociarse, y  $M$  y  $v$  son la masa y la velocidad final respectivamente del protón que acompaña al ion  $H_2^+$ , la velocidad final  $v_1$  del ion  $H_2^+$  es

$$E_d = \frac{1}{2}2M\frac{v^2}{4} + \frac{1}{2}Mv^2 \Rightarrow v = 2\sqrt{\frac{E_d}{3M}} \Rightarrow v_1 = \sqrt{\frac{E_d}{3M}}. \quad (4.33)$$

En el sistema laboratorio, la diferencia entre las energías máximas del espectro de iones  $H_2^+$  transmitidos será

$$\Delta E_{\text{máx}} = 4M\sqrt{\frac{2E}{M}}v_1 = 4\sqrt{\frac{2E_d E}{3}}, \quad (4.34)$$

donde  $E$  es la energía inicial en el sistema laboratorio por unidad atómica de masa. El primer término de la derecha de la ecuación (4.34) es despreciable frente al segundo, ya que  $E_d \ll E$ . Esta diferencia de energía la encontraremos cuando a la salida de la lámina tengamos una disociación del tipo (1), mientras que para una disociación del tipo (2) no tendremos repulsión coulombiana, por lo que nos saldrá una acumulación de iones  $H_2^+$  con una energía que vale aproximadamente  $\Delta E_{\text{máx}}/2$ .

Pero no sólo la repulsión coulombiana tiene lugar en estos procesos, sino que hemos de tener en cuenta los efectos de vecindad electrónica entre los productos de la disociación, es decir entre el  $H_2^+$  y el  $H^+$  o entre el  $H_2^+$  y el  $H^0$ . Los espectros resultantes de la transmisión de estos iones  $H_2^+$ , pueden verse influidos por la proximidad del fragmento  $H^+$  o  $H^0$  vecino.

En los próximos dos apartados vamos a analizar la repulsión y los efectos de vecindad que se observan en dos resultados experimentales realizados por el grupo de Lyon y por el grupo de Kyoto antes mencionados en el apartado 4.2. Los experimentos realizados por el grupo de Lyon [Cue *et al.* 1979b] se

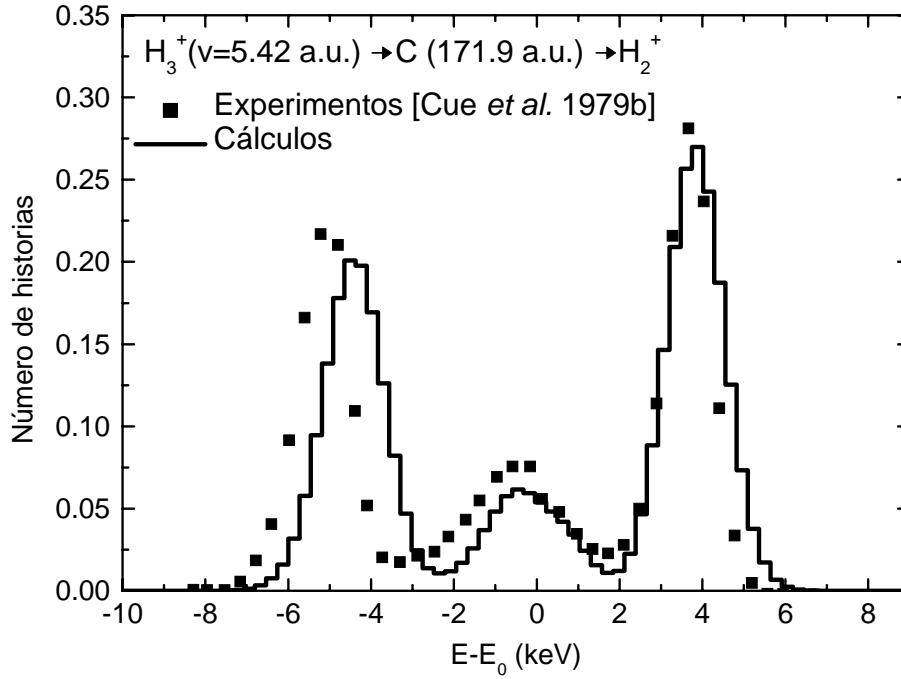


Figura 4.15: Espectro de energía a ángulo  $0^\circ$  de iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo de 171.9 a.u. de espesor para un haz incidente de iones  $H_3^+$  a una velocidad 5.42 a.u. Se comparan los resultados experimentales (símbolos) con los calculados (histograma).

efectuaron a unas velocidades próximas a 5 a.u., por lo que según la clasificación del capítulo 3 corresponde a la situación de energías intermedias, mientras que la velocidad de los experimentos del grupo de Kyoto [Susuki *et al.* 1995] es de unos 19.6 a.u., que corresponde a la situación de altas energías.

#### 4.5.1. Energías intermedias

En esta sección vamos analizar los espectros de energía de iones  $H_2^+$  transmitidos procedentes de haces incidentes de  $H_3^+$  del experimento realizado por el grupo de Lyon [Cue *et al.* 1979b] a una velocidad de 5.42 a.u sobre láminas de carbono amorfo.

En la figura 4.15 [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003] representamos el típico espectro de energía de iones  $H_2^+$  que salen de la lámina con ángulo

$0^\circ$  respecto a la dirección de incidencia del haz, para un espesor de 171.9 a.u. Los picos más exteriores corresponden a iones traseros (pico con pérdida de energía negativa) y a iones delanteros (pico con pérdida de energía positiva). Estos picos son debidos a la repulsión coulombiana del tipo (1),  $H_2^+ + H^+$ , procedente de la disociación del ion  $H_3^+$ .

También podemos ver un pico central que es debido a la no repulsión coulombiana de la disociación tipo (2),  $H_2^+ + H^0$ , del ion  $H_3^+$ . El pico central está situado a una pérdida de energía aproximadamente cero en el espectro de energías, lo cual nos viene a indicar que los iones  $H_2^+$  reciben muy poca energía en el instante de la disociación. Esto es cierto, ya que obtenemos el mismo resultado para el espectro de energía calculado con el programa de simulación que no incluye ninguna ganancia o pérdida energética en el instante de la disociación. Por lo que el pequeño desplazamiento respecto al cero de pérdida de energía es debido al frenado global del agregado.

Otro proceso al cual se podría deber el pico central es el caso de una disociación del tipo (1), en la cual el protón sufra una fuerte colisión con los núcleos del material de la lámina, dejando al ion  $H_2^+$  viajando solo, sin ningún tipo de repulsión. Este último proceso parece poco probable ya que las colisiones nucleares no son muy importantes a estas velocidades. Aunque el sistema formado por la disociación del tipo (2) implica la transmisión de un agregado con dos electrones, su probabilidad es bastante más alta, como se demuestra en la altura del pico central.

La fracción de la disociación del tipo (2) frente al total de las disociaciones del  $H_3^+$  en  $H_2^+$  calculada con nuestro programa de simulación es de un 3 %, mientras que la que nos dan los experimentales es del 0.6 %. Esta discrepancia puede estar ligada al hecho de que en nuestro programa de simulación hemos considerado, por simplicidad, que el sistema formado por  $[H_2^+, H^0]$  tiene como vida media la del  $H_2^+$  o la del  $H^0$ , lo cual parece poco acertado ya que el  $H_2^+$  o el  $H^0$  puede tener una influencia bastante importante sobre la pérdida del electrón de su vecino. También podría ser debido a que la distribución experimental no fuera exactamente a ángulo  $0^\circ$ , por tanto acumularía una proporción de neutros mucho menor y de ahí una fracción del tipo (2) también menor.

También podemos calcular la energía potencial de disociación a partir de la diferencia de energía entre los dos picos exteriores utilizando la ecuación (4.34). La diferencia de energía entre estos picos depende poco del espesor de la lámina a atravesar, ya que los iones se recogen en un detector a una distancia suficientemente grande de la lámina, de manera que casi toda la



energía potencial de disociación,  $E_d$ , se convierte en energía cinética debido a la repulsión coulombiana.

El resultado obtenido a partir de la figura 4.15 nos da un valor aproximado de  $\Delta E_{\text{máx}} = 8.9 \text{ keV}$ , el cual nos da un valor de  $E_d = 10.13 \text{ eV}$  para la energía potencial de disociación. Si comparamos la energía potencial de disociación obtenida con la energía potencial eléctrica del sistema justo en el momento de disociarse  $E_e = 16.95 \text{ eV}$ , vemos que la energía de disociación no es un poco mayor que la eléctrica como esperábamos, sino que es bastante menor. Esto nos viene a confirmar que no hay una ganancia de energía importante debido al hecho de disociarse. Además el hecho de que nos dé un valor de energía potencial de disociación menor que el de la potencial eléctrica lo podemos atribuir a que la disociación del tipo (1) puede transformarse en el tipo (2) durante el viaje en la lámina frenando la repulsión coulombiana.

Otro aspecto a destacar es la diferencia de altura entre los picos más externos. Esta asimetría ha sido anteriormente obtenida para espectros de disociación atómicos [Arista 1978, Eckardt *et al.* 1978] y analizada profundamente por nuestro grupo de investigación [García-Molina *et al.* 2000a, 2000b]. Lo destacable para el actual espectro de energía molecular, es que el pico delantero es más alto que el trasero, al contrario de lo que ocurre para un espectro de energías atómico. Esta observación fue apuntada por Cue *et al.* [1979b], dando como posible solución una asimetría en la destrucción del ion  $\text{H}_2^+$ , es decir, el ion trasero se destruiría mucho antes debido a una mayor concentración local de electrones del medio inducida por el ion delantero.

Para contrarrestar esta afirmación sólo nos hace falta ver el resultado casi idéntico obtenido con nuestro programa de simulación, cuando en nuestro programa de cálculo no hemos incluido ningún tipo de asimetría en la destrucción de los iones  $\text{H}_2^+$ , ni mucho menos un cambio en la concentración local de electrones del medio para el ion trasero, simplemente hemos incluido los efectos de vecindad explicados en el apartado 4.4.

#### 4.5.2. Altas energías

En esta sección, al igual que en la sección anterior, vamos a analizar espectros de energía experimentales de iones  $\text{H}_2^+$  procedentes de la disociación de iones  $\text{H}_3^+$ . En este caso se trata del experimento realizado por Susuki *et al.* [1995] a una velocidad de  $19.6 \text{ a.u.}$  sobre láminas de carbono amorfo.

En la figura 4.16 representamos un ejemplo del espectro de energía de iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos, después de atravesar una lámina de carbono amorfo

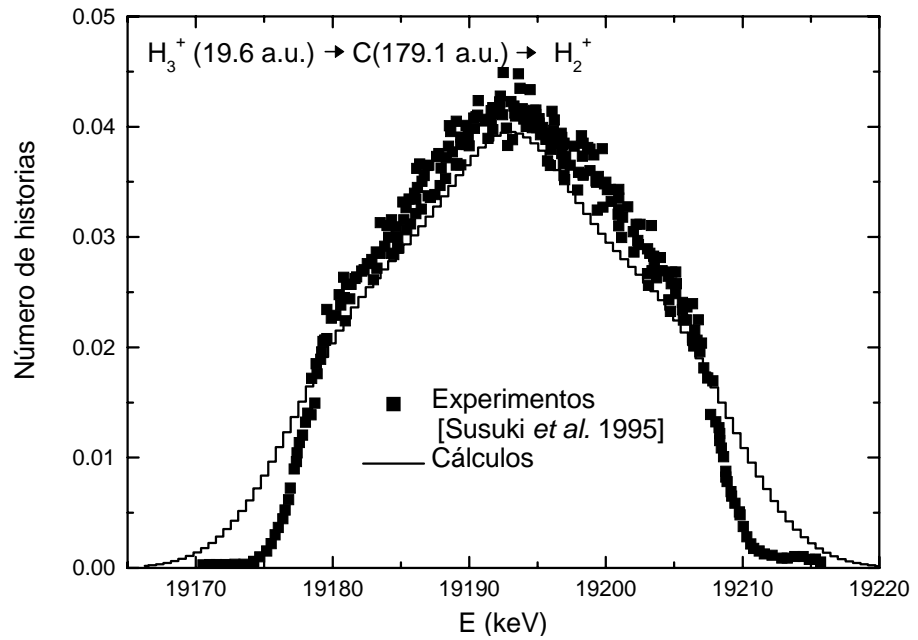


Figura 4.16: Espectro de energía a todo ángulo de iones  $H_2^+$  transmitidos a través de una lámina de carbono amorfo de 171.9 a.u. de espesor para un haz incidente de iones  $H_3^+$  con una velocidad de 19.6 a.u. (9.6 keV/amu). Se comparan los resultados experimentales (símbolos) con los calculados (histograma).

de 171.9 a.u. En este espectro no diferenciamos los tres picos que veíamos para el espectro del experimento de Cue *et al.* [1979b], ya que se detectan todos los iones que salen de la lámina y no sólo los que salen a ángulo cero. El espectro está formado por un pico ancho central y una distribución uniforme entre un máximo y un mínimo de energía. Podemos pensar que el espectro es la superposición de dos trapecios; uno debido a los iones  $H_2^+$  procedentes de la disociación (1) y otro resultante de la disociación (2). El primer trapecio sería una meseta constante entre la energía mínima y máxima debido a la repulsión coulombiana isotrópica de la disociación (1), mientras que el segundo trapecio tiene forma de un pico ancho central.

En este experimento la velocidad es mucho más alta, por lo que despreciaremos del todo el hecho de que el pico central se deba a iones  $H_2^+$  que hayan perdido su protón acompañante. Al ser tan alta la velocidad parece aún menos probable que se transmita el sistema formado por la disociación

(2), pero vemos que la figura 4.16 está lejos de tener una forma de meseta como correspondería a una transmisión propia de la disociación (1). Es más, la fracción de la disociación (2) calculada con nuestro programa de simulación es aproximadamente un 4 % mayor que la calculada con nuestro programa para el experimento de Cue *et al.* [1979b].

Al igual que para la sección anterior, podemos calcular la energía potencial de disociación a partir de la diferencia de energía máxima del espectro representado en la figura 4.16 y de la ecuación (4.34). El valor obtenido es  $\Delta E_{\text{máx}} = 35.08$  keV, lo cual nos da un valor de la energía potencial de disociación de  $E_d = 12.02$  eV. Este valor es más grande que el encontrado para el experimento de energías intermedias  $E_d = 10.13$  eV, pero todavía es menor que el valor de la energía potencial eléctrica  $E_e = 16.95$  eV. Concluimos, entonces, que existe también una transformación de la disociación (1) en la (2), pero que es menor que a energías intermedias. En cuanto a los efectos de vecindad, no podemos distinguir ninguna asimetría en la altura de los picos debido a que no hay ningún pico bien definido, ni siquiera en el espectro uniforme.

## 4.6. Distribuciones de energía y ángulo de iones $\text{H}^+$

En este apartado vamos a estudiar las distribuciones de energía y ángulo de los fragmentos que emergen de láminas delgadas después de que el ion molecular  $\text{H}_3^+$  se disocie en su interior. Mediante el programa de simulación calcularemos las distribuciones de energía y ángulo para una lámina de carbono amorfo y para unas velocidades del haz incidente próximas a 5 a.u.; estas características corresponden a los casos experimentales con los cuales compararemos nuestros resultados [Gaillard *et al.* 1978b].

Como hemos visto en el primer apartado del capítulo, hay muchos estudios experimentales sobre la geometría inicial de la molécula de  $\text{H}_3^+$  que nos dicen que la configuración más estable es un triángulo equilátero, cuya distancia interprotónica en el nivel fundamental es aproximadamente  $R_0 = 1.71$  a.u. En los experimentos la molécula no tiene porqué estar en su nivel fundamental, sobre todo en los experimentos más antiguos que carecían de cámaras de enfriamiento. Es por lo que implementaremos en nuestro programa de simulación una distancia interprotónica inicial según una distribución gaussiana

con un valor medio  $R = 1.9$  a.u. y con una desviación típica de  $\sigma = 0.4$  a.u. Esta distribución gaussiana es la misma que la hallada por el grupo experimental [Gaillard *et al.* 1978b] para los datos que aquí compararemos. Notamos que el valor medio de la distribución gaussiana obtenida experimentalmente es mayor que el fundamental, lo cual nos confirma que la molécula está excitada antes de entrar a la lámina.

El estudio de las distribuciones de energía y ángulo también puede ser un método para analizar la geometría inicial de la molécula de  $H_3^+$  [Gaillard *et al.* 1978b], pero aquí además nos vamos a centrar en la pérdida de energía y en la dispersión de los fragmentos para saber qué interacciones se dan dentro de la lámina.

En este apartado supondremos para el cálculo teórico que el ion  $H_3^+$  se disocia en sus fragmentos desde un principio. Los fragmentos disociados son tres protones cuya fracción de carga neutra es muy pequeña (a las velocidades de los experimentos), al igual que la de los protones disociados de la molécula de  $H_2^+$ , ver apartado 3.6. Ya que esta fracción de carga neutra no influye mucho en los resultados podemos prescindir de ella en este apartado para simplificar los cálculos.

Los tres protones disociados de la molécula de  $H_3^+$  sufren una repulsión coulombiana hasta que toda la energía potencial inicial se convierte en energía cinética. La energía potencial inicial de tres protones que forman un triángulo equilátero es  $E_{p_0} = 3/R$ , donde  $R$  es el lado del triángulo, y es mucho más grande que la energía vibracional y rotacional, por lo que prescindiremos de estas dos últimas en el cálculo teórico. Después de salir de la lámina, los fragmentos experimentan una repulsión coulombiana pura en el vacío ya que supondremos que los tres fragmentos están siempre cargados positivamente. La consideración de la explosión coulombiana fuera de la lámina es importante porque la explosión coulombiana que ocurre dentro del material no es completa, sobre todo para altas energías y para láminas no muy gruesas.

Durante el viaje en la lámina se producen además otros tipos de interacciones, como son las interacciones con los núcleos del material de la lámina, y el autofrenado y las fuerzas de vecindad debido al medio electrónico del material explicadas en el capítulo 1. Todas estas interacciones influirán en las distribuciones de energía y ángulo de los protones a la llegada al detector.

En la figura 4.17 presentamos los espectros de energía a ángulo  $0^\circ$  para los protones disociados procedentes de un haz de moléculas  $\text{H}_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.17$  a.u. (668 keV/amu) sobre láminas de carbono amorfo de varios espesores. La aceptación del detector es de  $0.12^\circ$  y su resolución energética de 5 keV (ancho total a mitad de altura, FWHM). Los espesores de la lámina de carbono amorfo para la figuras 4.17a y 4.17b son de 105 y de 380 Å, respectivamente. Los símbolos corresponden a resultados experimentales [Gemmell *et al.* 1975] y el histograma es nuestra simulación.

Para obtener el efecto de aceptación angular del experimento, sólo hemos tenido en cuenta en nuestro cálculo los protones emergentes dentro de un cono angular de la misma abertura que el detector experimental alrededor de la dirección del haz. A la hora de comparar las distribuciones de energía calculadas de los protones disociados de las moléculas de  $\text{H}_3^+$  con el correspondiente espectro experimental, hemos convolucionado las distribuciones teóricas con gaussianas cuya anchura depende del coeficiente de rugosidad de la lámina y de la resolución energética del detector experimental (apéndice D). Bajo las condiciones del experimento, el mayor ensanchamiento viene del efecto de la rugosidad de la lámina, que es aproximadamente del 10 %.

Los espectros muestran dos picos, como se espera de una repulsión coulombiana de tres protones que forman un triángulo equilátero, ya que los tres experimentarán la misma repulsión coulombiana [Gaillard *et al.* 1978b]. Si la molécula de  $\text{H}_3^+$  fuera lineal, cualquiera de los protones exteriores sufriría una mayor repulsión debido a la suma de la fuerza coulombiana ejercida por los otros dos protones, aunque en distinto sentido. Mientras el protón del centro sufriría una repulsión menor debido a que las fuerzas coulombianas ejercidas por los otros dos protones tienen sentido opuesto y por tanto obtendríamos tres partículas con distinta energía.

También vemos que el pico de menor energía tiene siempre más intensidad que el pico de mayor energía. Esta diferencia de altura se debe a los efectos de vecindad electrónicos entre los fragmentos que viajan juntos procedentes de una misma disociación. Los efectos de vecindad hacen que los fragmentos que viajan delante influyan en el movimiento de los fragmentos traseros alineándolos en la dirección del haz.

La única diferencia que notamos cuando aumenta el espesor de la lámina es un incremento en la diferencia de altura de los picos. Para el espesor mayor la diferencia de altura es mayor debido a que los efectos de vecindad electrónicos pueden actuar durante más tiempo. La pérdida de energía global de los tres protones concuerda con los resultados experimentales. Los efectos

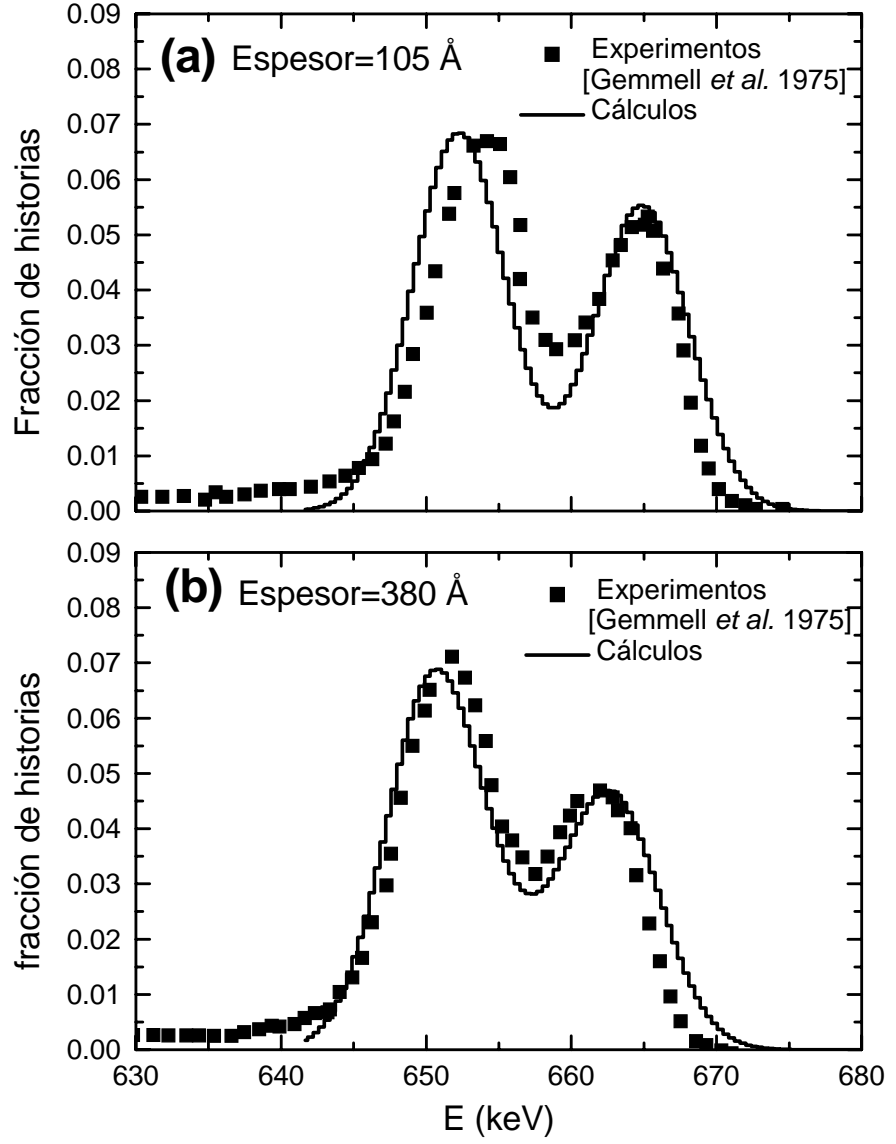


Figura 4.17: Espectros de energía a ángulo  $0^\circ$  para los protones disociados de moléculas  $H_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.17$  a.u. (668 keV/amu) en láminas de carbono amorfo de (a) 105 Å y (b) 380 Å de espesor. Los símbolos corresponden a resultados experimentales [Gemmell *et al.* 1975] y el histograma es nuestra simulación.

de las colisiones con los núcleos de la lámina son pequeños para las velocidades a las que se realiza el experimento.

El ajuste entre las distribuciones de energía experimentales y calculadas es bastante bueno. Las pequeñas discrepancias en la altura del valle entre los picos coulombianos entre la distribución experimental y calculada para el espesor menor, pueden ser achacadas a que el espesor experimental sea un poco mayor del que nos indica el grupo experimental, ya que las alturas de estos valles en las distribuciones de espesor mayor son similares.

A continuación abordaremos el estudio de otro conjunto de datos experimentales realizados en Argonne y Lyon [Gaillard *et al.* 1978b], respectivamente. En estos experimentos también analizaremos las distribuciones de energía y ángulo para los protones disociados de la molécula de  $\text{H}_3^+$ .

El experimento de Argonne se realizó con un haz de moléculas  $\text{H}_3^+$  incidiendo con una velocidad de  $v = 5.29$  a.u. en una lámina de carbono amorfo de  $140 \text{ \AA}$  de espesor. La aceptación del detector es de  $0.013^\circ$  y su resolución energética es de  $0.42 \text{ keV}$ .

La figura 4.18 muestra la distribución de energía experimental y calculada de los protones disociados de la molécula de  $\text{H}_3^+$  para ángulo cero. En este caso obtenemos dos picos mucho más definidos que en la figura 4.17, ya que la aceptación del detector es casi diez veces más pequeña.

Además vemos un pequeño pico central para el caso experimental que no vemos para la distribución calculada por nuestra simulación. Este pico central puede ser producido por dos causas: por las colisiones del proyectil con los núcleos del blanco, o porque los proyectiles no experimenten repulsión coulombiana. A su vez, el hecho de no experimentar una repulsión coulombiana se puede deber a que dos protones de una misma disociación hayan sufrido una fuerte colisión con los núcleos del material de la lámina, dejando al otro protón viajando solo, sin ningún tipo de repulsión; o que dos protones de una misma disociación capturen un electrón del medio y tampoco haya repulsión.

Sabemos que en nuestra simulación no hemos implementado la captura electrónica y no hemos obtenido ningún pico central, por lo que esto nos viene a decir que el pico central es mayormente debido a la anulación de la repulsión coulombiana por la captura electrónica de dos de los protones de una misma disociación.

Entre los picos delantero y trasero vemos una diferencia de alturas debido a los efectos de vecindad ya explicados en el apartado 3.6. Estos efectos de vecindad también causan un pequeño aumento en la separación de los

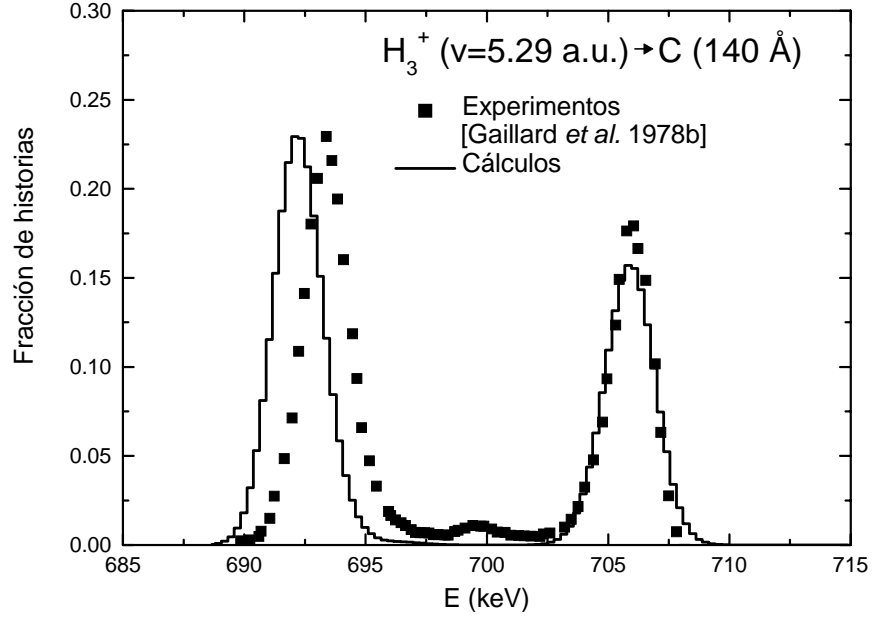


Figura 4.18: Espectros de energía a ángulo  $0^\circ$  para los protones disociados procedentes de un haz de moléculas  $H_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.29 \text{ a.u.}$ . El espesor de la lámina de carbono amorfo es  $140 \text{ \AA}$ . Los símbolos corresponden a resultados experimentales [Gaillard *et al.* 1978b] y el histograma es nuestra simulación.

picos. Los efectos de vecindad al alinear los fragmentos en la dirección del haz hace aumentar la diferencia de energía entre ellos gracias a la repulsión coulombiana. Es por eso que el encontrar una mayor diferencia en la altura de los picos en el cálculo teórico conlleva a que haya una mayor diferencia en la separación de los picos del espectro energético.

También podemos analizar la distribución de ángulos a la llegada al detector de los fragmentos para el mismo experimento. La figura 4.19 representa la distribución de ángulos experimental y calculada de protones que llegan al detector con una energía de 700 keV. La obtención de dos picos al igual que en la distribución de energías nos confirma la geometría de triángulo equilátero de la molécula de  $H_3^+$ . Cualquier otra geometría para la molécula de  $H_3^+$  daría unas distribuciones con más picos. Por ejemplo para una geometría lineal tendríamos una distribución de ángulos con tres picos. El pico central sería



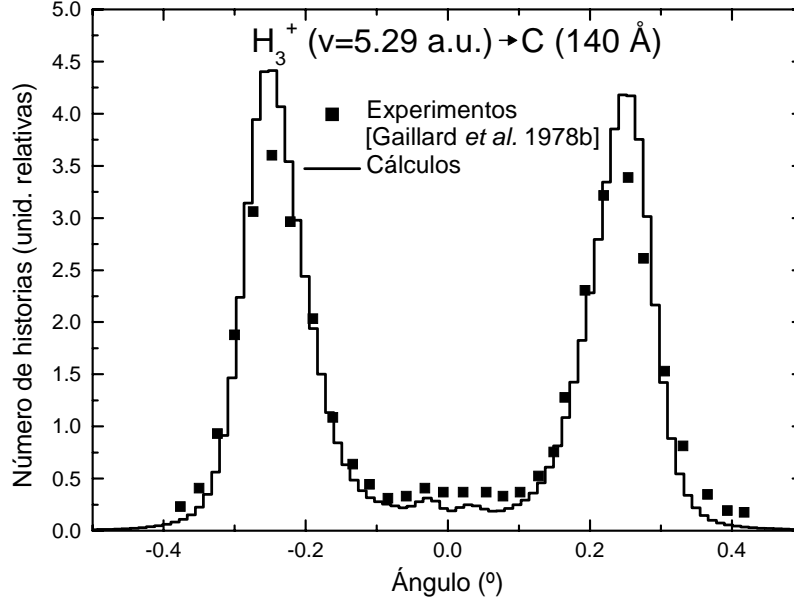


Figura 4.19: Distribución de ángulos para los protones que llegan al detector con una energía de 700 keV que proceden de la disociación de moléculas  $H_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.29$  a.u. sobre una lámina de carbono amorfo de 140 Å de espesor.

debido al protón de en medio que al sufrir menos la repulsión coulombiana tendría una distribución de ángulos próxima al valor  $0^\circ$ , mientras que los picos exteriores serían debidos a los protones más exteriores, ya que sufren una repulsión mayor.

El efecto de alineamiento de los efectos de vecindad tiene como consecuencia un estrechamiento en la diferencia de ángulo de los picos en las distribuciones de ángulo, pero en este caso, no vemos ninguna discrepancia notable entre el resultado experimental y el teórico. La diferencia de la altura entre la distribución calculada y la experimental se debe a que las dos distribuciones están normalizadas al área; como la distribución calculada es más estrecha y contiene menos historias en la parte central es más alta que la experimental.

También podemos analizar en la figura 4.20 la distribución de ángulos para protones que llegan al detector con cualquier energía, correspondiente

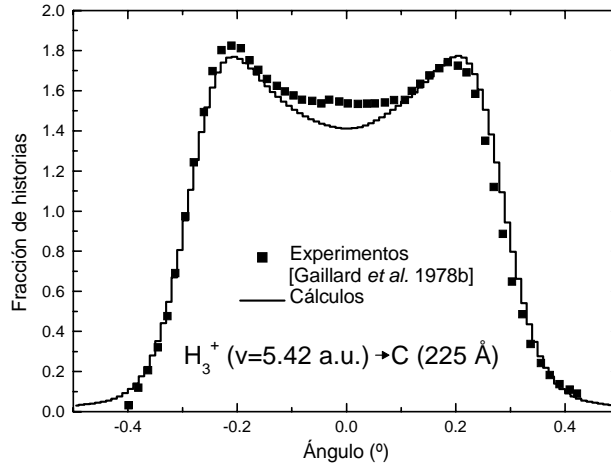


Figura 4.20: Distribución de ángulos para los protones que llegan al detector con cualquier energía procedentes de la disociación de moléculas  $H_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.42$  a.u. sobre una lámina de carbono amorfo de  $225 \text{ \AA}$  de espesor.

al experimento de Lyon [Gaillard *et al.* 1978b]. En este caso la velocidad del haz de moléculas  $H_3^+$  incidente es  $v = 5.42$  a.u. y el espesor de la lámina de carbono es  $225 \text{ \AA}$ . La aceptación del detector es  $0.019^\circ$ .

Aquí también vemos los dos picos, aunque no tan bien definidos como para el experimento de Argonne. El llenado entre picos se debe a que recogemos los protones para todas energías. De todas formas, la obtención de dos picos reafirma la geometría de triángulo equilátero de la molécula de  $H_3^+$ .

Por último, analizaremos un espectro de energías de la disociación de la molécula de  $H_3^+$  obtenido por Miao *et al.* [1986]. El experimento se realizó para una velocidad del haz incidente de  $v = 5.24$  a.u. y para una lámina de carbono de  $150 \text{ \AA}$  de espesor. La aceptación del detector que suponemos en el cálculo teórico es  $0.013^\circ$ , ya que es la que mejor ajusta a los datos experimentales. La resolución del detector experimental es  $0.12 \text{ keV}$ .

Tanto la distribución de energías a ángulo cero experimental como la calculada, mostradas en la figura 4.21, presentan dos picos que caracterizan la molécula de  $H_3^+$  con una geometría triangular equilátera. Como en los experimentos anteriores, la separación de los picos es consecuencia de la repulsión coulombiana, mientras que la diferencia de alturas entre éstos

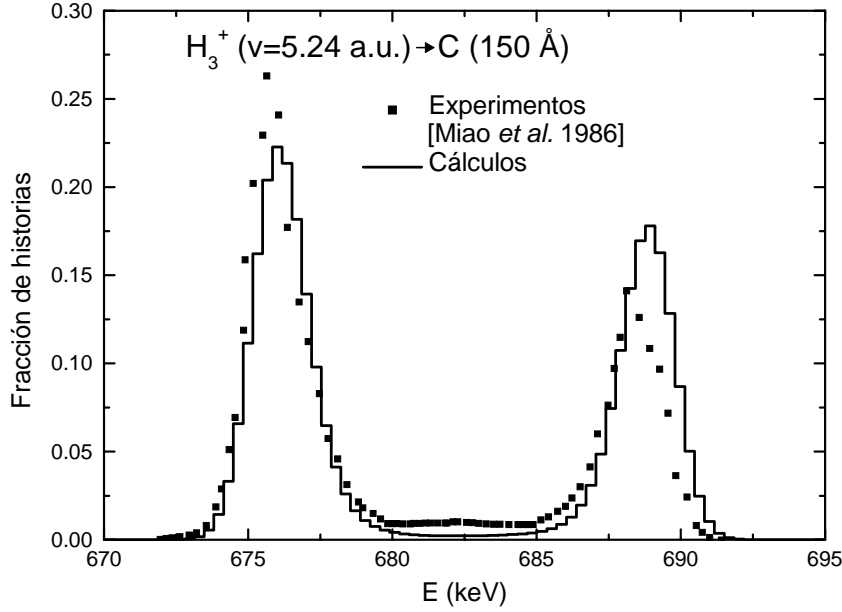


Figura 4.21: Espectros de energía a ángulo  $0^\circ$  para los protones disociados procedentes de un haz de moléculas  $H_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.24$  a.u. El espesor de la lámina de carbono amorfo es  $150 \text{ \AA}$ . Los símbolos corresponden a resultados experimentales [Miao *et al.* 1986] y el histograma es nuestra simulación.

es debido a los efectos de vecindad. La discrepancia entre la diferencia de altura entre los picos experimentales y los teóricos puede ser debido a que el valor de la aceptación que utilizamos en el cálculo no sea el mismo que el experimental, el cual desconocemos. De todas maneras, sabemos que cuanto menor es la aceptación más protones alineados recogemos en el detector, que a su vez son los que más han sufrido los efectos de vecindad electrónicos.

En conclusión, el buen ajuste de nuestros resultados a los datos experimentales nos demuestra que tanto nuestro modelo teórico como los métodos de simulación implementados en nuestro programa son totalmente válidos. El excelente ajuste en el frenado global nos lleva a pensar que el formalismo dieléctrico describe satisfactoriamente las interacciones con los electrones del material. Esto queda corroborado en el estudio de los efectos de vecindad electrónica de las diferentes distribuciones de energía.

Si nos fijamos en las tres distribuciones energéticas a ángulo cero expe-

rimentales de este apartado (figuras 4.17, 4.18 y 4.21), vemos que nuestros cálculos describen bastante bien las diferencias de altura entre los dos picos coulombianos, concluyendo que son debidas a los efectos de vecindad. También vemos que la posición de estos picos están perfectamente hallada a partir de nuestra simulación, lo cual confirma nuestro método de dinámica molecular y el cálculo de la explosión coulombiana.

Otro efecto importante que hemos notado es el de la aceptación del detector. La diferencia de altura de los picos de las distribuciones de energía se van haciendo mayor a lo largo que se desarrolla este apartado, mientras el llenado del valle entre los picos se hace menor. Esto nos lleva concluir que, siendo parecida la velocidad y los espesores de los tres experimentos, la aceptación del detector juega un papel muy importante en las distribuciones de energía.

Gracias a la comparación entre nuestra simulación y los datos experimentales de la figura 4.18, podemos afirmar que el pequeño pico central que aparece en dicha figura es producido mayormente por la falta de repulsión debida a la captura electrónica de los protones disociados.

## 4.7. Geometría a la salida de la lámina

Los experimentos que analizaremos en este apartado son recientes y se han realizado empleando un anillo de almacenamiento, donde la molécula de  $\text{H}_3^+$  se desexcita hasta quedar en el nivel fundamental [Wester 1999], por lo que utilizaremos la distribución gaussiana de distancias internucleares iniciales caracterizada por los valores  $R_0$  y  $\sigma_0$  del apartado 4.1.

El estudio que presentamos en este apartado es meramente cualitativo, ya que los cálculos son realizados para láminas de carbono amorfo y aluminio, mientras que los resultados experimentales han sido realizados para una lámina de formvar (lámina aislante compuesta de resinas de polivinilos de acetato, cuya densidad,  $1.8 \text{ g/cm}^3$ , es aproximadamente la del carbono amorfo). Es por este motivo que presentamos este estudio al final de este capítulo, deseando poder hacer un análisis más exacto en un futuro. De todas formas este cálculo cualitativo nos servirá para poner a prueba nuestro programa de simulación y para hacer notar la importancia de los efectos de vecindad en los análisis de los datos experimentales.

Primero analizaremos mediante nuestro programa de simulación las distribuciones de distancias interprotónicas después de atravesar una lámina delgada, en función de la orientación inicial de la molécula de  $\text{H}_3^+$ . En este

caso teórico supondremos que el haz incide en una lámina de carbono amorfo de 100 Å de espesor a unas velocidades 3 y 4 a.u. Escogemos estas condiciones iniciales porque son próximas a las condiciones para unos resultados experimentales que presentaremos al final de esta sección, obtenidos para una lámina de formvar.

Las distribuciones de las distancias relativas entre los protones a la llegada al detector tienen todas la misma forma para cualquier orientación inicial de la molécula (figura 4.22a); esto es así porque cuando los protones llegan al detector son indistinguibles. Con nuestro programa de simulación podemos distinguir los tres protones de la molécula de  $\text{H}_3^+$  y seguir su pista a lo largo de su recorrido hasta su llegada al detector. Llamaremos 1 al protón más avanzado, 2 al intermedio y 3 al más retrasado en la geometría inicial de la molécula. Seguidamente calcularemos las distancias relativas  $d_{12}$ ,  $d_{13}$  y  $d_{23}$  a la llegada al detector para tres orientaciones iniciales características.

Para una orientación inicial donde el plano de la molécula es paralelo y la distancia inicial  $d_{23}$  perpendicular a la dirección del haz, tal como se muestra en la figura 4.22b, obtenemos en el detector dos distribuciones  $d_{12}$  y  $d_{13}$  iguales, con un valor medio mayor que la distribución  $d_{23}$ . Esto se debe a que la distancia  $d_{23}$ , al ser perpendicular al movimiento, sufre más el efecto alineador de las fuerzas de vecindad.

En la siguiente orientación inicial, donde el plano de la molécula es también paralelo a la velocidad del haz pero la distancia perpendicular es la  $d_{12}$ , obtenemos el mismo resultado en las distribuciones en el detector (figura 4.22c). En este caso cabe puntualizar que el valor medio de la distribución de la distancia perpendicular es mayor que en el caso de la distancia perpendicular discutida anteriormente; esto se debe a que ahora la distancia perpendicular se encuentra en la parte delantera del conjunto de protones, donde los efectos de las fuerzas de vecindad son menores.

Para finalizar presentamos el último caso, donde el plano de la molécula es perpendicular a la velocidad del haz (figura 4.22d). Como cabría esperar, las tres distribuciones de distancias interprotónicas al llegar al detector son idénticas, pues las tres tenían inicialmente la misma disposición respecto de la dirección del haz. En toda la discusión anterior hay que mencionar que no nos hemos fijado en el valor concreto del centro y ancho de las distribuciones ya que éstos dependerán de la distancia a la que esté situado el detector.

A continuación vamos a calcular las mismas distribuciones de distancias anteriores, pero para el caso de una orientación inicial aleatoria, el cual se corresponde más a la realidad de los experimentos, en los que normalmente

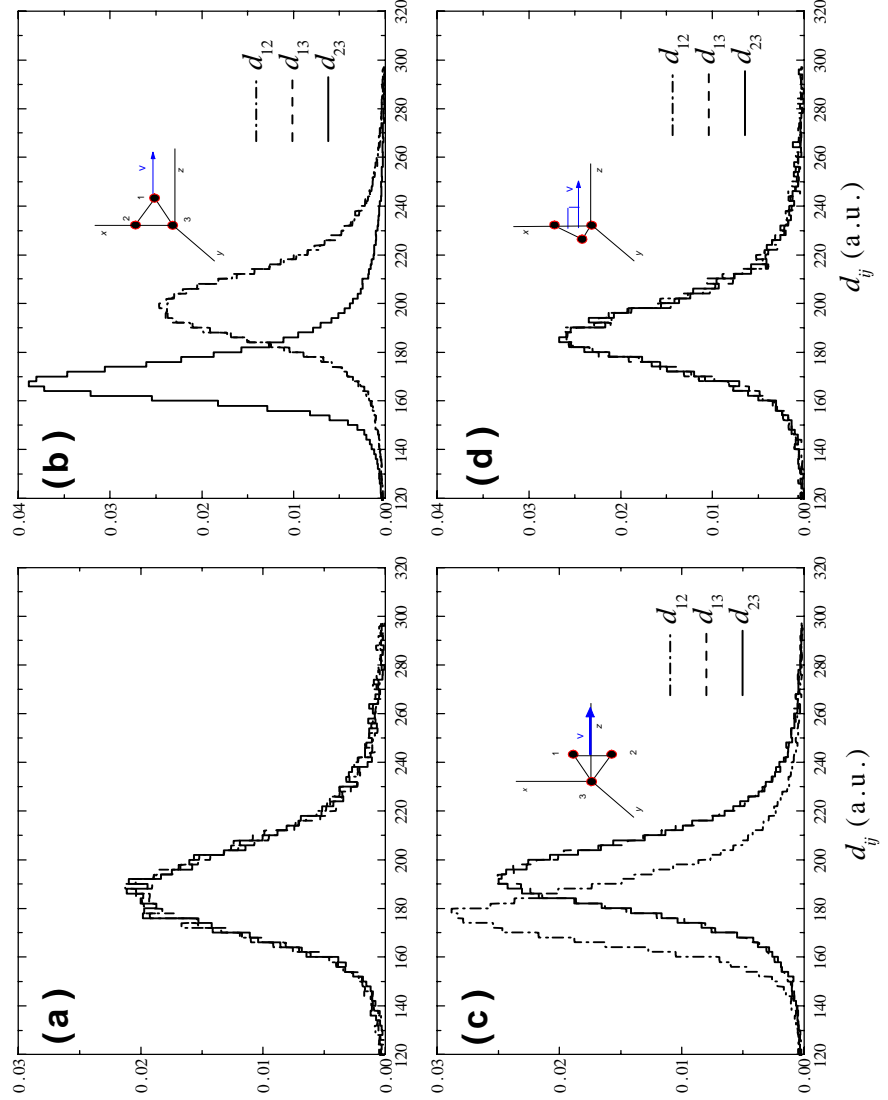


Figura 4.22: Distribuciones de las distancias relativas  $d_{12}$ ,  $d_{13}$  y  $d_{23}$  entre los protones disociados de una molécula  $\text{H}_3^+$  a la llegada al detector. La velocidad inicial de la molécula es  $v = 3$  a.u. y la lámina de carbono amorfo tiene 100 Å de espesor. El caso (a) corresponde a protones indistinguibles a la llegada al detector. Los casos (b), (c) y (d) son para protones distinguibles y para la orientación inicial indicada en cada caso.

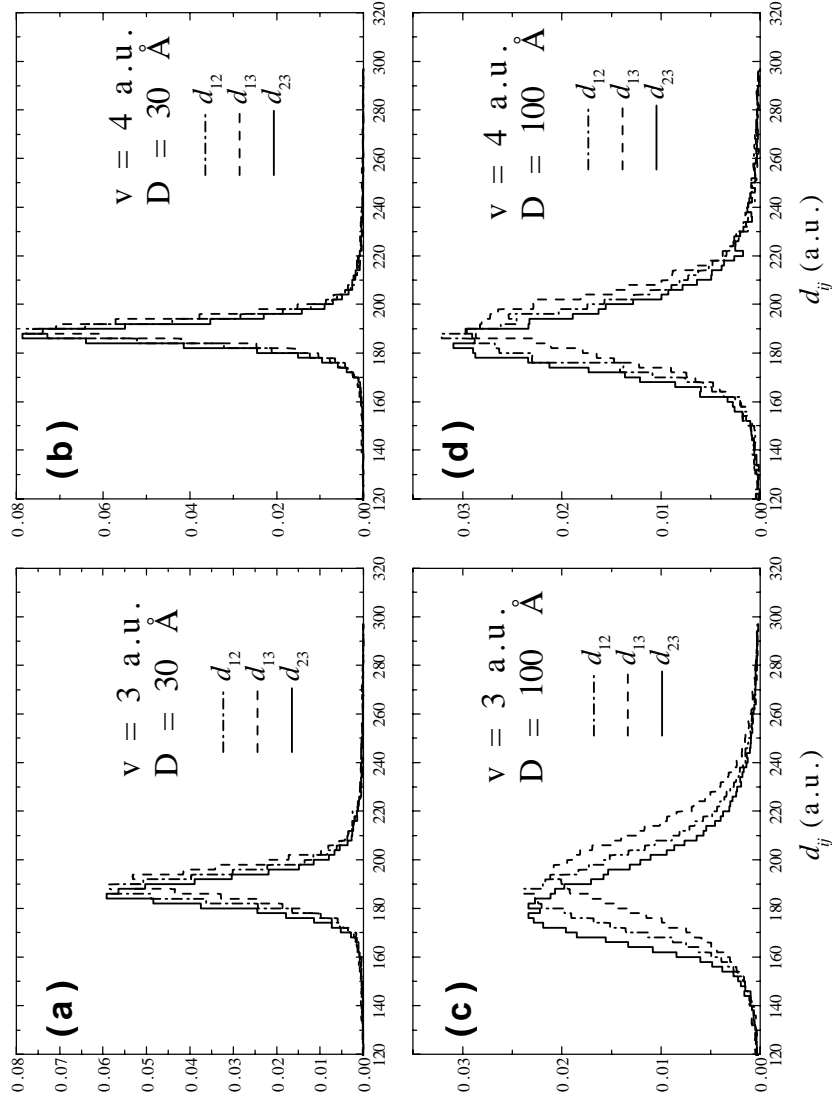


Figura 4.23: Distribuciones de las distancias relativas  $d_{12}$ ,  $d_{13}$  y  $d_{23}$  entre los protones disociados de una molécula  $\text{H}_3^+$  a la llegada al detector después de atravesar una lámina de carbono. Las velocidad y el espesor de la lámina son los siguientes: (a)  $v = 3$  a.u.,  $D = 30$  Å; (b)  $v = 4$  a.u.,  $D = 30$  Å; (c)  $v = 3$  a.u.,  $D = 100$  Å y (d)  $v = 4$  a.u.,  $D = 100$  Å.

no hay ninguna orientación privilegiada. En la figura 4.23 representamos las distribuciones de distancias para cuatro casos con diferentes velocidades y espesores de una lámina de carbono amorfo. Es común a los cuatro casos que la distribución  $d_{13}$  tiene un valor medio mayor que la distribución  $d_{12}$  y ésta, a su vez, tiene su valor medio mayor que la  $d_{23}$ . La explicación es bien sencilla. En el programa de simulación seguimos distinguiendo entre los tres protones que forman la molécula, de modo que el protón 1 es el más avanzado y el 3 es el más retardado. Por lo que las distancias que más se acortan debido a las fuerzas de vecindad son las relativas a los protones más retrasados.

Vemos en la figura 4.23a que estas diferencias son mínimas para un espesor de lámina pequeño, ya que las fuerzas de vecindad no tienen mucho tiempo para actuar. Por este mismo motivo, si aumentamos la velocidad del haz incidente el tiempo de tránsito disminuye y aún hay menos diferencias entre las diferentes distribuciones de distancias, tal como se aprecia en la figura 4.23b. Si aumentamos el espesor de la lámina, ya vemos más claramente estas diferencias (figura 4.23c), aunque disminuyan con la velocidad (figura 4.23d). De aquí podemos concluir que para tiempos de tránsito mayores, es decir para espesores mayores y velocidades bajas, obtenemos más efectos de vecindad. Hemos de tener en cuenta también que los efectos de vecindad son más grandes para velocidades del proyectil más bajas (apartado 1.2.1), por lo que esto contribuye a destacar aún más los efectos para tiempos de tránsito mayores.

Seguidamente vamos a realizar los mismos cálculos con los mismos espesores y para las mismas velocidades, pero cambiando el tipo de material; ahora nuestras láminas serán de aluminio. En la figura 4.24 vemos los mismos efectos de vecindad que en los cuatro casos anteriores, que tienen la misma magnitud que para el caso de la lámina de carbono.

Como hemos dicho en la introducción al principio de este apartado, vamos a comparar cualitativamente con los resultados experimentales de Kreckel [2000] las predicciones que podemos realizar mediante nuestro programa de simulación sobre la geometría final de la molécula de  $\text{H}_3^+$ .

Ahora vamos a obtener la distribución teórica de probabilidades del ángulo  $\theta$  formado por la normal al plano de los protones, tal como llegan al detector después de atravesar una lámina de carbono amorfo, y la dirección del haz (figura 4.25). La línea continua de la figura 4.26a muestra que el ángulo más probable es  $\theta = 90^\circ$  ( $\cos(90^\circ) = 0$ ), lo cual se debe a que las fuerzas de vecindad tienden a alinear el plano de la molécula con la dirección del movimiento. Si no introdujéramos las fuerzas de vecindad en el programa



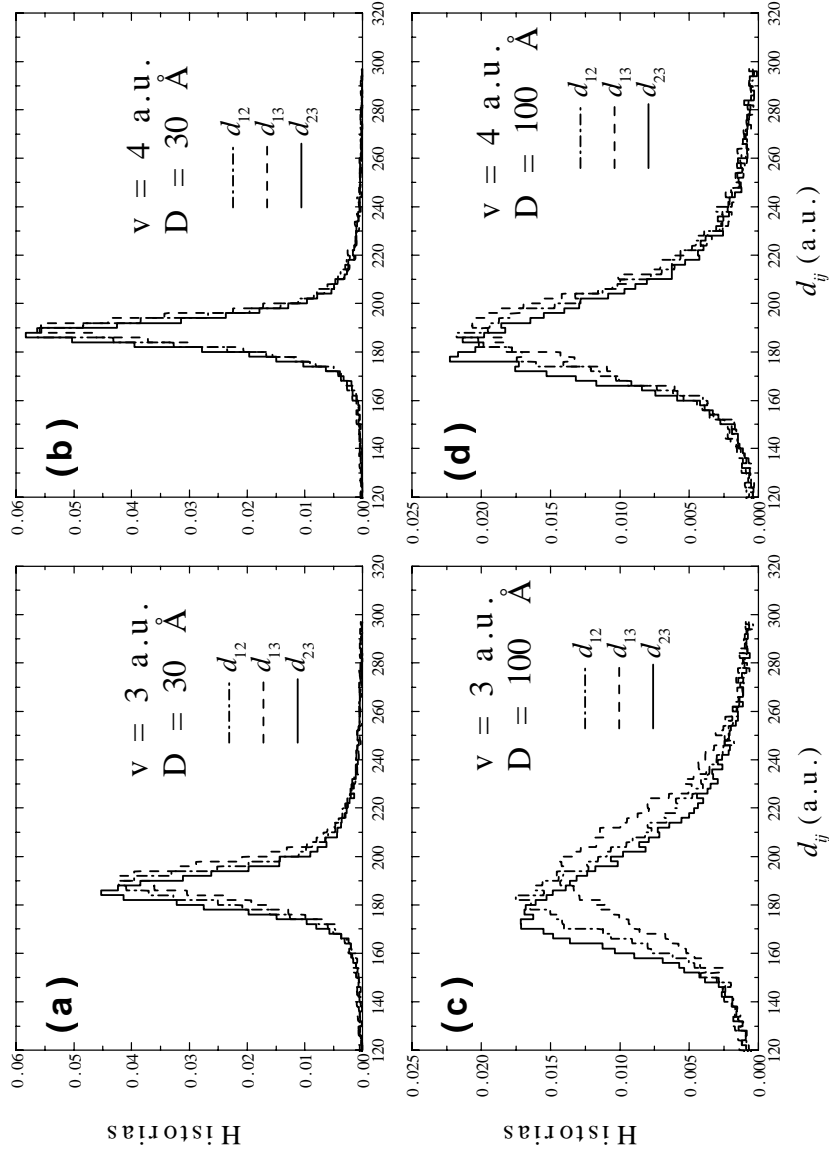


Figura 4.24: Distribuciones de las distancias relativas  $d_{12}$ ,  $d_{13}$  y  $d_{23}$  entre los protones disociados de una molécula  $\text{H}_3^+$  a la llegada al detector después de atravesar una lámina de aluminio. Las velocidades y el espesor de la lámina son los siguientes: (a)  $v = 3$  a.u.,  $D = 30$  Å; (b)  $v = 4$  a.u.,  $D = 30$  Å; (c)  $v = 3$  a.u.,  $D = 100$  Å y (d)  $v = 4$  a.u.,  $D = 100$  Å.

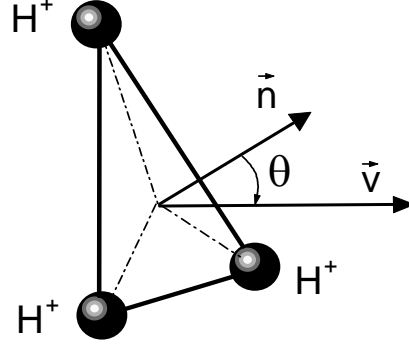


Figura 4.25: Dibujo esquemático del ángulo  $\theta$  formado por la normal al plano de los protones disociados de la molécula de  $\text{H}_3^+$ , tal como llegan al detector, y la dirección del haz.

de simulación tendríamos una distribución más uniforme (línea discontinua en la figura 4.26a). La pequeña disminución de probabilidad alrededor de  $\cos \theta = 0$  en esta última distribución, se debe a que las colisiones nucleares hacen que el plano formado por los protones se desvíe de su orientación paralela a la velocidad del haz.

En la figura 4.26b mostramos la misma distribución del ángulo normal al plano formado por los protones a su llegada al detector obtenidas experimentalmente, pero para el caso de una lámina de formvar. La densidad de este material es parecida a la del carbono ( $1.8 \text{ g/cm}^3$ ), y el experimento se ha realizado para una velocidad próxima y un espesor igual al caso que hemos simulado precisamente. Podemos ver la mayor probabilidad entorno al ángulo  $\theta = 90^\circ$ , debido a las fuerzas de vecindad electrónicas.

Como las distancias relativas con las que llegan las partículas al detector dependen de la distancia a la que se encuentre el detector de la lámina blanco, vamos a normalizar las distancias interprotónicas entre el tiempo que tardan en llegar los protones al detector. El resultado tiene unidades de velocidad

$$\vec{v}_{ij} = \frac{\vec{d}_{ij}}{d_{\text{det}}} v, \quad (4.35)$$

donde  $\vec{d}_{ij}$  es el vector relativo entre el fragmento  $i$  y  $j$ ,  $d_{\text{det}}$  es la distancia entre la lámina y el detector, y  $v$  es la velocidad inicial del haz incidente. Una vez normalizadas estas distancias, calculamos unas nuevas velocidades, que

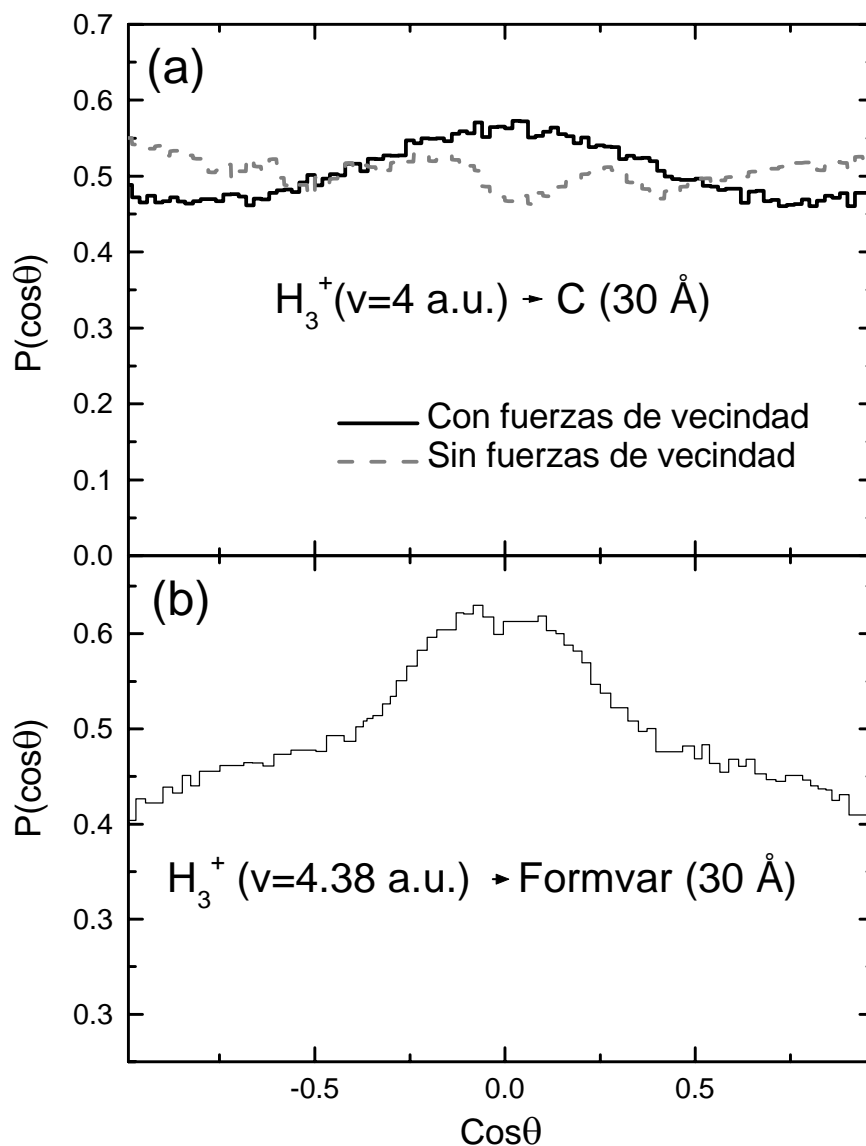


Figura 4.26: (a) Histogramas calculados de la probabilidad del  $\cos\theta$  de protones disociados de un haz incidente de moléculas  $H_3^+$  a una velocidad de 4 a.u. tras atravesar una lámina de carbono amorfo de 30 Å de espesor. La línea continua es el cálculo incluyendo fuerzas de vecindad electrónicas y la línea discontinua sin estas fuerzas. (b) Histogramas experimentales para una velocidad de 4.38 a.u. y para una lámina de formvar de 30 Å de espesor [Kreckel 2000].

son las coordenadas normalizadas de los modos de vibración de la molécula  $\text{H}_3^+$ , en función de los módulos de las velocidades  $\vec{v}_{ij}$  anteriores:

$$v_a = \frac{1}{\sqrt{3}} (v_{12} + v_{23} + v_{31}), \quad (4.36)$$

$$v_x = \frac{1}{\sqrt{6}} (2v_{12} - v_{23} - v_{31}), \quad (4.37)$$

$$v_y = \frac{1}{\sqrt{2}} (v_{23} - v_{31}). \quad (4.38)$$

Estas nuevas velocidades son utilizadas por el grupo experimental [Kreckel 2000] para caracterizar la geometría final de los fragmentos. La figura 4.27 representa en un mapa de tonos las historias recogidas en función de estas velocidades y del coseno del ángulo normal al plano formado por los tres fragmentos, analizado anteriormente. Esta figura corresponde al caso de los fragmentos disociados de iones  $\text{H}_3^+$  incidentes a una velocidad  $v = 4.38$  a.u. en una lámina de formvar de 30 Å de espesor [Kreckel 2000].

La figura 4.28 representa los mismos mapas de tonos obtenidos con nuestro programa de simulación para las mismas condiciones del experimento, pero con una lámina de carbono amorfo. Vemos que los cálculos tienen las mismas características pero no la misma magnitud. La figura 4.28 presenta un mayor número de historias alrededor de  $v_x$  y  $v_y$  igual a cero, respectivamente. Esto nos dice que las velocidades  $v_{12}$ ,  $v_{23}$  y  $v_{31}$  son bastante parecidas. No ocurre lo mismo para  $v_a$ , cuyo valor más probable depende del ángulo normal  $\theta$ . Para valores de  $\theta$  próximos a  $90^\circ$  el valor más probable de  $v_a$  es más grande, mientras que para valores próximos a  $0^\circ$  el valor más probable es menor. Se puede entender que el valor más probable de  $v_a$  para  $\theta = 0^\circ$  es cuando las tres velocidades  $v_{12}$ ,  $v_{23}$  y  $v_{31}$  son iguales, al ser el plano formado por los fragmentos perpendicular a la dirección de movimiento del haz. Por lo que  $v_{12} \simeq v_{23} \simeq v_{31} \simeq \bar{v}_a/\sqrt{3}$ , donde  $\bar{v}_a$  es el valor más probable de  $v_a$ . Entonces es para  $\theta = 90^\circ$  cuando el perímetro del triángulo formado por los fragmentos es mayor.

También vemos que para las tres figuras, tanto teóricas como experimentales, el ángulo normal  $\theta$  siempre tiene un máximo para  $\cos \theta = 0$  pero esta característica ya fue analizada anteriormente. Para acabar, veremos que si repetimos los cálculos, pero sin incluir la fuerzas de vecindad electrónica, la curvatura característica de la figura 4.28 para  $v_a$  se gira en la dirección

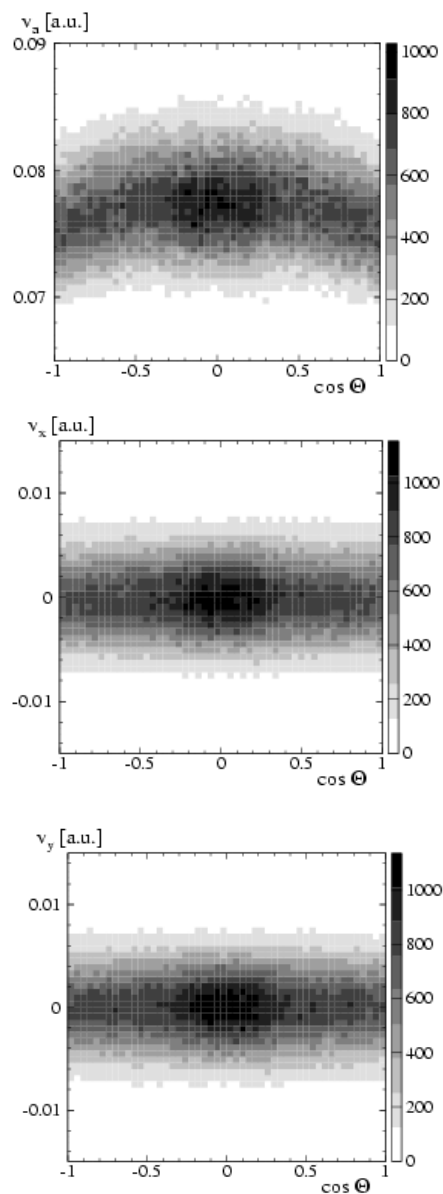


Figura 4.27: Mapa de tonos experimental de las historias que llegan a un detector en función de las velocidades  $v_a$ ,  $v_x$  y  $v_y$ , y del coseno del ángulo normal al plano formado por los tres fragmentos. Los fragmentos provienen de la disociación de un haz de moléculas  $\text{H}_3^+$  que inciden a una velocidad de 4.38 a.u. en una lámina de formvar de 30 Å de espesor [Kreckel 2000].

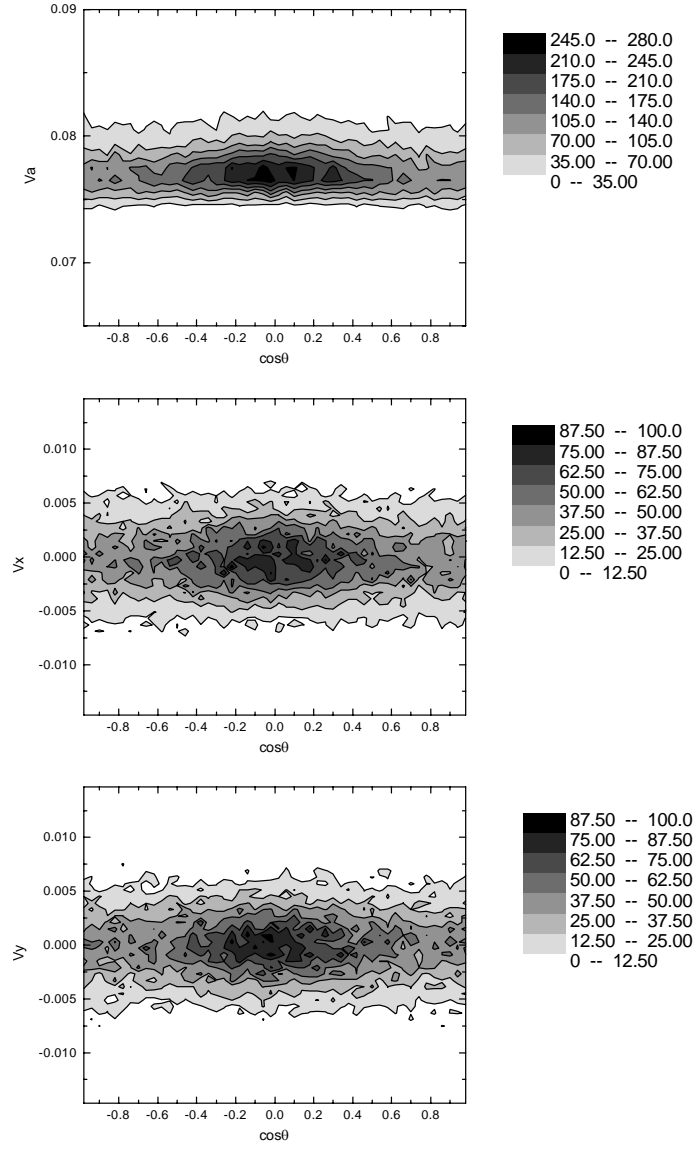


Figura 4.28: Mapa de tonos calculado de las historias que llegan a un detector experimental en función de cada “distancia”  $v_a$ ,  $v_x$  y  $v_y$  y del coseno del ángulo normal al plano formado por los tres fragmentos. Los fragmentos provienen de la disociación de un haz de moléculas  $\text{H}_3^+$  que inciden a una velocidad de 4 a.u. en una lámina de carbono amorfo de 30 Å de espesor.

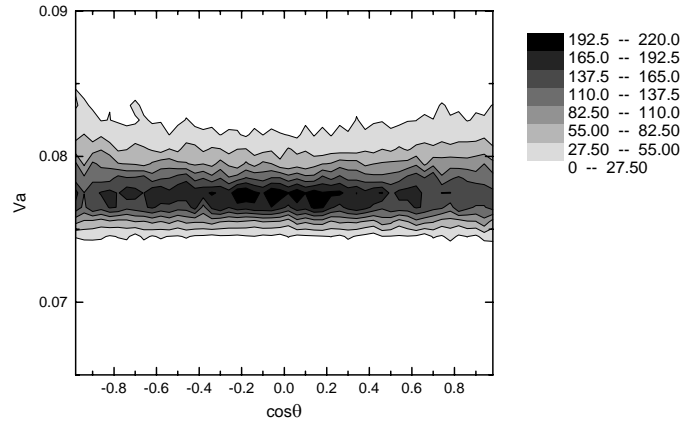


Figura 4.29: Caso  $v_a$  de la figura 4.28 cuando no incluimos efectos de vecindad electrónicos.

contraria (figura 4.29). Ahora cuando el plano interprotónico viaja perpendicular a la velocidad del haz,  $\theta = 0^\circ$ , las colisiones nucleares hacen que se separen más las distancias.

En resumen, tanto el estudio teórico de las distribuciones de las distancias interprotónicas como el estudio cualitativo del ángulo normal del plano formado por los tres protones disociados y de las velocidades de los modos de vibración, nos indican que los efectos de vecindad calculados con nuestro programa son correctos y que han de tenerse en cuenta para dar una interpretación adecuada de los resultados experimentales. Es más, en el estudio teórico del principio del apartado podemos discernir, gracias a nuestro programa de simulación, entre los efectos de vecindad de los protones más retrasados y más adelantados de una misma disociación. Mientras que en el estudio cualitativo del ángulo normal del plano formado por los protones disociados hemos observado que los efectos de vecindad tienden a alinear este plano con la dirección del haz.

# Capítulo 5

## Tránsito de iones $H_n^+$

En este capítulo vamos a estudiar el tránsito de agregados de hidrógeno a través de láminas delgadas, para unas velocidades incidentes de los agregados próximas a la velocidad de Bohr. En concreto, nos fijaremos en los protones procedentes de la disociación de los iones  $H_n^+$  para  $n = 5, 7$  y  $9$ ; este capítulo constituye una extensión del estudio realizado con los iones más pequeños anteriormente analizados, ( $n = 1, 2$  y  $3$ ).

Analizaremos el frenado, las distribuciones de ángulo y de distancias internucleares, y los efectos de captura y pérdida electrónica de los protones disociados después de atravesar láminas de carbono amorfo de distintos espesores. Estos efectos vendrán influenciados por la presencia de fragmentos vecinos que viajan juntos procedentes de una misma disociación. Esta influencia dependerá fuertemente de la posición y la velocidad relativa instantánea entre los fragmentos, y a su vez la posición y la velocidad relativa instantánea de cada fragmento dependerá de la posición inicial en el agregado de hidrógeno inicial (la velocidad relativa inicial se ignora en esta simulación), así como de su orientación respecto de la dirección del haz.

### 5.1. Geometría inicial

Los resultados experimentales dependen de la estructura inicial del agregado de hidrógeno, por lo que el conocimiento de esta estructura es de vital importancia para entender estos resultados. Por otro lado, un análisis de los experimentos nos puede llevar a obtener la estructura inicial del agregado, como en el caso del agregado  $H_3^+$  [Gemmell 1980].



Hay un número bastante alto de estudios teóricos sobre agregados de hidrógeno positivos, y todos concluyen que en los agregados de iones  $H_n^+$  la forma de triángulo equilátero del ion  $H_3^+$  sirve de agente de nucleación para los iones  $H_2^+$ . Los agregados  $H_2^+$  y  $H_3^+$  han sido estudiados profundamente en secciones anteriores, por lo que aquí sólo veremos cómo es la geometría de los agregados más complejos:  $H_5^+$ ,  $H_7^+$  y  $H_9^+$ .

La geometría inicial de los iones  $H_5^+$ ,  $H_7^+$  y  $H_9^+$  se puede ver en la figura 5.1. Los valores de las distancias interprotónicas han sido tomados para el estado de mínima energía de los diferentes agregados calculados por Farizon *et al.* [1991]. Los valores para las diferentes distancias y ángulos que definen la estructura de estos iones (figura 5.1) quedan mostrados en la tabla 5.1.

	$R_1$ (a.u.)	$R_2$ (a.u.)	$\alpha$ (°)	$D$ (a.u.)	$P$ (a.u.)	$\beta$ (°)
$H_2^+$	-	-	-	-	1.08	-
$H_3^+$	1.654	-	-	-	-	-
$H_5^+$	1.847	1.539	46.44	2.495	1.443	-
$H_7^+$	1.644	1.775	49.34	3.004	1.421	147.68
$H_9^+$	1.676	-	-	3.196	1.417	-

Tabla 5.1: Distancias y ángulos que definen las geometrías iniciales de los agregados de hidrógeno  $H_5^+$ ,  $H_7^+$  y  $H_9^+$  que se dibujan en la figura 5.1 [Farizon *et al.* 1991]. Se dan valores para el  $H_2^+$  y el  $H_3^+$  a efectos de comparación.

Los cálculos predicen que la geometría óptima del ion  $H_5^+$  está formada por una unidad  $H_2^+$  en uno de los vértices del triángulo que constituye el ion  $H_3^+$  central, siendo la unidad  $H_2^+$  perpendicular al plano de este triángulo. El hecho de que sólo haya una unidad  $H_2^+$  rompe la simetría en el plano de la unidad  $H_3^+$  central del agregado, y convierte el triángulo equilátero que formaría esta unidad en un triángulo isósceles. El triángulo isósceles lo constituyen dos distancias iguales,  $R_1 = 1.847$  a.u., mayores que la distancia internuclear  $R_1$  del agregado  $H_3^+$ , y una distancia  $R_2$  igual a 1.539 a.u., menor que la  $R_1$  del agregado  $H_3^+$ , y por consiguiente el ángulo  $\alpha$  es menor que  $60^\circ$ . La distancia  $D = 2.495$  entre la unidad  $H_2^+$  y el protón más cercano de la unidad central nos caracteriza la repulsión coulombiana entre estas dos unidades que forman el agregado  $H_5^+$ . Por otro lado la distancia  $P = 1.443$

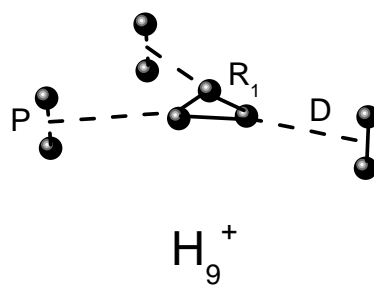
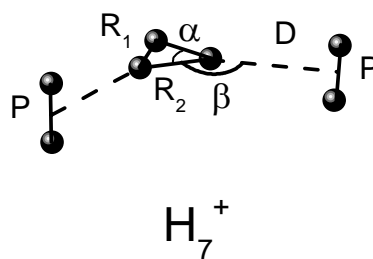
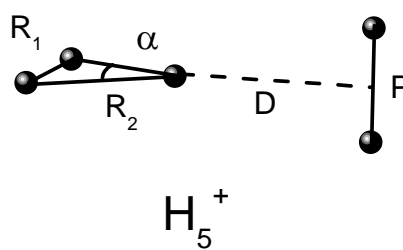


Figura 5.1: Geometría inicial de los agregados de hidrógeno  $\text{H}_5^+$ ,  $\text{H}_7^+$  y  $\text{H}_9^+$ . Los valores para las diferentes distancias y ángulos implicados se encuentran en la tabla 5.1 [Farizon *et al.* 1991].

a.u. de la unidad  $H_2^+$  nos caracteriza la repulsión entre protones en la dirección vertical al plano de la unidad central  $H_3^+$ . Para compensar la densidad de carga positiva de los tres protones de la unidad  $H_3^+$  los dos protones que forman la unidad  $H_2^+$  han de estar más separados que para el ion  $H_2^+$ ,  $P = 1.08$  a.u.

También se deforma el ion  $H_3^+$  central en el caso del agregado  $H_7^+$ . Las dos unidades  $H_2^+$ , perpendiculares al plano de la unidad central  $H_3^+$  que se le suman para formar el agregado, rompen su simetría. Como vemos en la tabla 5.1, la deformación del ion  $H_3^+$  central es significativamente diferente a lo que sucedía en el caso del ion  $H_5^+$ . Ahora el triángulo isósceles tiende a parecerse más al equilátero, con dos lados iguales de valor  $R_1 = 1.644$  a.u., inferior al tercero,  $R_2 = 1.775$  a.u. Además, la distancia  $D = 3.004$  a.u. entre las unidades  $H_2^+$  y el protón más cercano, es unas 0.5 a.u. superior a la del ion  $H_5^+$ . Este incremento en la distancia  $D$  y el valor del ángulo  $\beta$  ( $147.68^\circ$ ) se relaciona con la repulsión entre las dos unidades  $H_2^+$  del agregado  $H_7^+$ . Vemos también que la distancia  $P = 1.421$  a.u. entre los dos protones que forman las unidades  $H_2^+$  es ligeramente menor que en el caso del ion  $H_5^+$ , ya que al haber más unidades  $H_2^+$  se reparte más la repulsión ejercida por los protones de la unidad central.

Finalmente analizamos la estructura del agregado  $H_9^+$ . La estructura que presentamos en la figura 5.1 es, al igual que para los otros agregados, la estructura más estable, es decir la que presenta un estado de mínima energía. En este caso se compone de tres unidades  $H_2^+$  situadas en los vértices del triángulo formado por el ion  $H_3^+$  central. Al ser tres unidades  $H_2^+$  no se rompe la simetría del agregado, por lo que volvemos a tener un ion  $H_3^+$  central con forma de triángulo equilátero. Este triángulo tiene una distancia interprotónica,  $R_1 = 1.676$  a.u., un poco mayor que la del agregado  $H_3^+$ ,  $R_1 = 1.654$  a.u. Además, la distancia  $D = 3.196$  a.u. del agregado  $H_9^+$  se incrementa unas 0.2 a.u. respecto a la del agregado  $H_7^+$ . Estas dos últimas características son consecuencia de la repulsión entre las tres unidades  $H_2^+$  del agregado  $H_9^+$ . La distancia  $P = 1.417$  a.u. de las unidades  $H_2^+$  disminuye por las mismas razones explicadas para el agregado  $H_7^+$ .

## 5.2. Modelo para la pérdida y captura electrónica

Sabemos que cuando un haz de iones incide sobre un material pierde la mayoría de sus electrones ligados en las primeras capas del blanco. Una vez atravesadas las primeras capas, los iones vuelven a capturar electrones del medio, para después soltarlos otra vez. Así se llega a un equilibrio del estado carga a lo largo de todo el recorrido en el material; el valor de la fracción del estado carga en equilibrio depende de la velocidad y de la naturaleza del proyectil, y débilmente del material [Allison 1958].

Si estudiamos iones moleculares, los estados de carga dependerán además de las influencias mutuas entre los fragmentos disociados vecinos mientras que viajan por la lámina. En este trabajo vamos a estudiar este último efecto para los agregados de iones más sencillos, los de hidrógeno.

Primero necesitamos saber los estados de carga de los protones disociados y la probabilidad de éstos cuando viajan dentro de un material, en este caso carbono amorfo. Una vez conocidos los estados de carga del protón y su probabilidad, lo implementaremos en nuestro programa de simulación.

Los estados de carga del protón son  $H^+$ ,  $H^0$  y el  $H^-$  [de Castro Faria *et al.* 1986a]. Para un rango de velocidades alrededor de la velocidad de Bohr se puede despreciar la posibilidad del estado de carga  $H^-$ , que es del orden de  $10^{-5}$  menor que la del  $H^+$  [de Castro Faria *et al.* 1986a], debido a la dificultad que supone la captura de un segundo electrón.

Las fracciones de carga del protón aislado en carbono amorfo para las energías que nos interesan en este apartado han sido obtenidas experimentalmente [Château-Thierry y Gladieux 1975, de Castro Faria *et al.* 1986a], con un resultado comprendido en el rango  $\phi_0 = 0.3 - 0.6$ , según la velocidad del experimento.

Los iones moleculares de hidrógeno también pierden los electrones de ligadura en las primeras capas de la lámina al igual que los iones atómicos, pero al quedar los núcleos cargados positivamente experimentan una repulsión coulombiana que los separa rápidamente. Mientras que los iones viajan próximos dentro del material, se afectan mutuamente y los estados de carga difieren de cuando viajan solos [Maor *et al.* 1985, de Castro Faria *et al.* 1986b].

Para tiempos de tránsito pequeños, los iones están todavía muy juntos y se produce un incremento en la producción de  $H^0$ , mientras que para tiempos

de tránsito mayores ya están más separados y se vuelve a unos valores de producción de  $H^0$  característicos de iones aislados, como se vio para el caso de la disociación del ion  $H_2^+$  en el apartado 1.1.2. En este apartado vamos a ampliar un modelo desarrollado por Farizon *et al.* [1997] para calcular el incremento de la fracción de  $H^0$  en los agregados de hidrógeno.

Suponemos que la sección eficaz de pérdida del electrón de un átomo de hidrógeno es inversamente proporcional a la energía de ionización del átomo de hidrógeno; de este modo podemos establecer una relación simple entre la sección eficaz de pérdida electrónica para un átomo de hidrógeno moviéndose a través de un gas,  $\sigma_{p \text{ gas}}$ , y para otro dentro de un sólido,  $\sigma_{p \text{ sol}}$  [Farizon *et al.* 1997]:

$$\frac{\sigma_{p \text{ sol}}}{\sigma_{p \text{ gas}}} = \frac{I_{\text{gas}}}{I_{\text{sol}}}, \quad (5.1)$$

donde  $I_{\text{gas}}$  y  $I_{\text{sol}}$  son las energías de ionización de un átomo de hidrógeno en un gas y dentro de un sólido, respectivamente.

En cambio, la captura electrónica sucede para electrones localizados del medio, por lo que la sección eficaz de captura no dependerá del apantallamiento de los electrones deslocalizados [Farizon *et al.* 1997] y, por tanto, la sección eficaz de captura electrónica será la misma para un protón en un sólido o en un gas:

$$\sigma_{c \text{ sol}} = \sigma_{c \text{ gas}}. \quad (5.2)$$

Si sustituimos las ecuaciones (5.1) y (5.2) en la ecuación (1.6), obtenemos:

$$\frac{1}{\phi_0} = \frac{I_{\text{gas}}}{I_{\text{sol}}} \frac{\sigma_{p \text{ gas}}}{\sigma_{c \text{ gas}}} + 1. \quad (5.3)$$

Podemos obtener un resultado similar para la fracción de neutros correspondiente al caso de un protón rodeado de  $n - 1$  vecinos. Solamente hemos de calcular cuál es la energía de ionización,  $I_{\text{sol}}^i$ , de un átomo de hidrógeno rodeado de estos  $n - 1$  vecinos.

Como hemos mencionado antes, el incremento en la fracción de neutros se produce cuando los fragmentos están juntos, por lo que la energía de ionización  $I_{\text{sol}}^i$  dependerá de la distancia relativa entre fragmentos. Si para el caso del  $H_2^+$  la energía de ionización se puede escribir como la energía de ligadura del estado molecular más una energía de repulsión entre los dos protones [Levine 1977], podemos modelizar la energía de ionización de un ion

$H_n^+$  según la expresión:

$$I_{\text{sol}}^i = L_{\text{sol}}^i + \sum_{j=1, j \neq i}^n \left[ \frac{\exp(-R_{ij}/a)}{R_{ij}} (1 + bR_{ij}^2) \right], \quad (5.4)$$

donde  $L_{\text{sol}}^i$  es igual a la energía de ligadura de un electrón capturado por un protón dentro del sólido, y el segundo sumando es la energía de repulsión apantallada entre dos protones  $i$  y  $j$  que distan  $R_{ij}$ . Este segundo término depende de las constantes  $a$  y  $b$ , donde  $a$  es la distancia de apantallamiento utilizada por Farizon *et al.* [1997] y  $b$  es una constante de corrección. El factor  $(1 + bR_{ij}^2)$  es una corrección a la exponencial para valores de  $R_{ij}$  grandes.

Finalmente, podemos escribir la fracción de neutros de un protón rodeado de  $n - 1$  vecinos como:

$$\frac{1}{\phi_0^i} = \frac{I_{\text{gas}} \sigma_{\text{p gas}}}{I_{\text{sol}}^i \sigma_{\text{c gas}}} + 1. \quad (5.5)$$

A partir de esta ecuación y de la ecuación (5.3), escribimos:

$$\frac{1}{\phi_0^i} = \frac{I_{\text{sol}}}{I_{\text{sol}}^i} \left( \frac{1}{\phi_0} - 1 \right) + 1. \quad (5.6)$$

Obtendremos el valor de  $I_{\text{sol}}$  de la bibliografía [Rogers *et al.* 1970], el de la  $I_{\text{sol}}^i$  de la ecuación (5.4), para una  $a$  y  $b$  determinadas, y el de  $\phi_0$  de los resultados experimentales de Farizon *et al.* [1997] para protones aislados.

Si implementamos la ecuación (5.6) en nuestro programa y modificamos convenientemente el valor  $b$ , podemos ajustar nuestros cálculos a los datos experimentales obtenidos por el grupo de Lyon.

En la figura 5.2 representamos mediante símbolos rellenos la fracción de neutros experimental [Farizon *et al.* 1997] procedentes de la disociación de agregados de hidrógeno  $H_n^+$  que inciden con unas velocidades de 1.1, 1.27, 1.55, 1.79 y 2.19 a.u. en láminas de carbono amorfo de distinto espesor (240.6 y 389.5 a.u.). Los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación utilizando la ecuación (5.6) aparecen representados por símbolos huecos.

La comparación es bastante buena teniendo en cuenta que sólo variamos el valor de  $b$  para obtener la misma fracción de neutros que en los experimentos. El valor de  $b$  correspondiente a cada velocidad aparece junto a sus curvas. Vemos que estos valores no dependen del espesor de la lámina, sólo de la velocidad del agregado incidente. También observamos que el valor de  $b$  disminuye a medida que aumentamos la velocidad incidente, ya que para

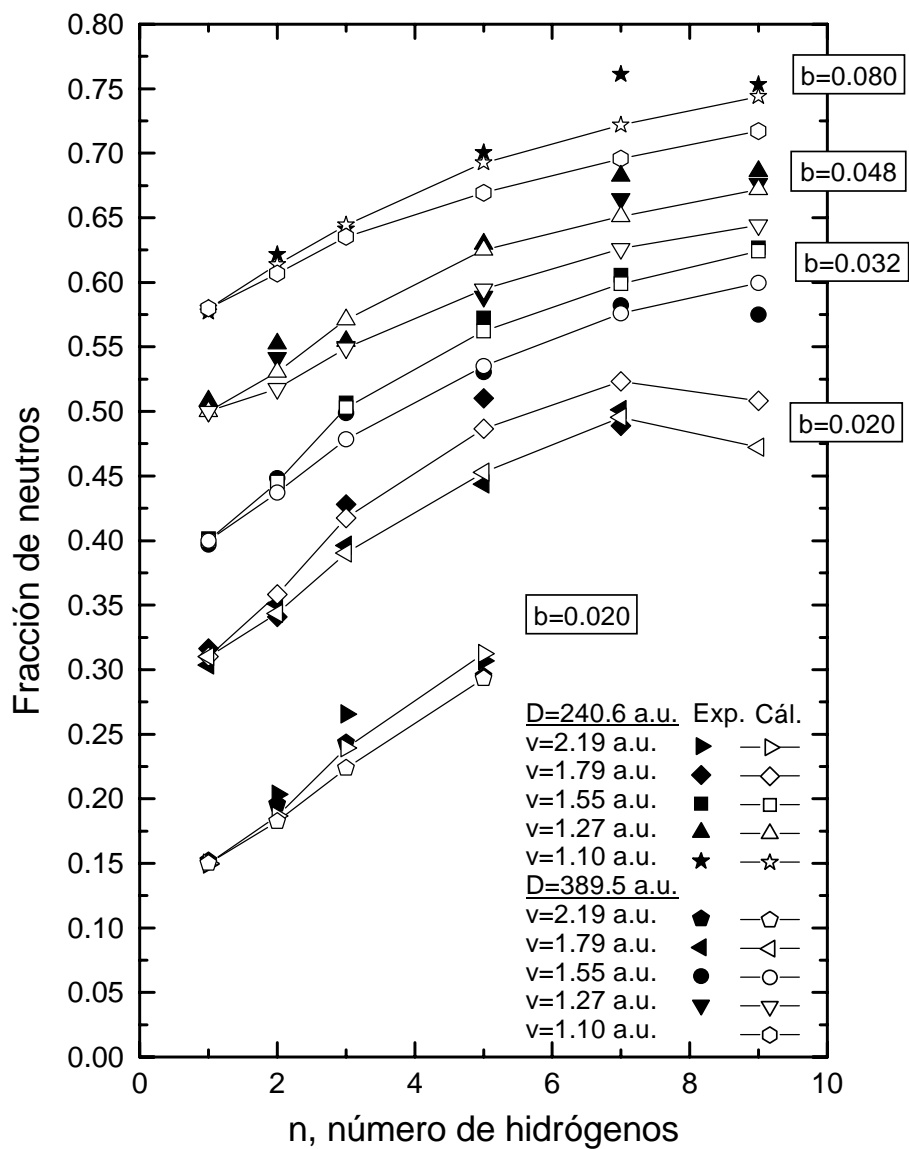


Figura 5.2: Resultados experimentales (símbolos rellenos) [Farizon *et al.* 1997] y cálculos (símbolos huecos) para la fracción de neutros  $\phi_0^i$  en función del número de hidrógenos de un agregado que atraviesa láminas de carbono amorfo de 240.6 y 389.5 a.u. de espesor con unas velocidades incidentes de 1.1, 1.27, 1.55, 1.79 y 2.19 a.u. Las líneas sirven para guiar la vista.

mayor velocidad del agregado, las separaciones  $R_{ij}$  a lo largo del recorrido son menores y, por tanto, la corrección  $(1 + bR_{ij}^2)$  tiene menor importancia frente al término exponencial  $\exp(-R_{ij}/a)$ .

Hay que hacer notar que la fracción de neutros que nosotros utilizamos para ajustar a los datos experimentales la implementamos durante el recorrido en el interior de la lámina, por lo que nuestros resultados de  $b$  son mayores que los calculados por Farizon *et al.* [1997], que sólo la implementan en la salida. Al estar la fracción de neutros implementada sólo en la salida de la lámina, el valor de  $R_{ij}$  de la ecuación (5.4) es mayor que en cualquier momento del interior, por lo que los valores de  $b$  del grupo de Farizon tienen que ser evidentemente menores que los nuestros.

Aparte del análisis del modelo, vemos en general que la fracción de neutros experimental aumenta con el número de constituyentes del agregado  $H_n^+$  para una misma velocidad y para un mismo espesor. Este efecto queda reflejado en nuestro modelo al aumentar el número de sumandos en la ecuación (5.4) según aumenta el número de hidrógenos del agregado.

Para una misma velocidad, el aumento en la fracción de neutros con el número de hidrógenos es diferente según el espesor de la lámina. Sin duda esto representa una dependencia de la fracción de neutros con las distancias entre los protones disociados del agregado. Para un espesor mayor las distancias  $R_{ij}$  son mayores y, por tanto,  $\phi_0^i$  es menor. Este hecho se incluye en nuestro modelo al considerar la energía de repulsión apantallada de los fragmentos, que depende de  $R_{ij}$  en la  $\exp(-R_{ij}/a)$  y en la corrección  $(1 + bR_{ij}^2)$ , dentro del cálculo de la energía de ionización. Por último, hemos de decir que la fracción de neutros disminuye globalmente con la velocidad incidente del agregado, hecho que está considerado al tomar *a priori* el valor de la fracción de neutros para el caso de protón aislado,  $\phi_0$ .

### 5.3. Distribuciones de energía y ángulo de fragmentos disociados de $H_n^+$

Una vez conocida la estructura de los agregados de hidrógeno y la probabilidad de los estados de carga de los fragmentos, podemos analizar con nuestro programa de simulación otros resultados experimentales referentes a los fragmentos disociados de los agregados de hidrógeno tras incidir en láminas de carbono amorfo de diverso espesor.



En general, la orientación de los agregados en el haz incidente es aleatoria, por lo que en nuestra simulación sortearemos la orientación de las estructuras de los agregados, anteriormente halladas, entre una distribución homogénea de orientaciones, según el método del apartado 2.1. Supondremos también, que el agregado pierde todos sus electrones ligados y se disocia totalmente en sus protones al entrar en la lámina. Al perder sus electrones ligados, los protones se repelen mutuamente debido a la repulsión coulombiana, que por transcurrir dentro de un material, queda apantallada por las fuerzas de vecindad electrónica.

La repulsión coulombiana sería la única causa de la separación de los protones si no fuera por las colisiones de éstos con los núcleos del material. Las colisiones nucleares producen cambios en la dirección y una pequeña pérdida de energía en los fragmentos [Denton *et al.* 1998].

La mayor pérdida de energía se produce debido al frenado electrónico. Durante el recorrido por la lámina, los protones pueden capturar un electrón, anulando en este caso los efectos de la repulsión coulombiana [Denton *et al.* 2002a, 2002b]; una vez capturado el electrón, pueden volver a perderlo. La secuencia de captura y pérdida puede ir repitiéndose mientras el protón viaja por el interior de la lámina. Por último, a la salida de la lámina, los fragmentos viajarán por el vacío en un estado de carga invariable hasta llegar a la posición del detector. De esta manera, obtendremos las distribuciones de ángulo, de energía y de distancias internucleares de los diferentes estados de carga de los protones disociados y las compararemos con los correspondientes datos experimentales.

A continuación presentamos las distribuciones de ángulos para los fragmentos disociados procedentes de los agregados de hidrógeno anteriores. Los experimentos y sus respectivas simulaciones se han realizado a unas velocidades comprendidas entre 1 y 2 a.u. Las diferentes distribuciones de ángulos reflejan la repulsión coulombiana junto a las colisiones nucleares que sufren los fragmentos.

En la figura 5.3a se muestra la distribución de ángulos a la salida de la lámina para los átomos de hidrógeno procedentes de la disociación de iones  $H_7^+$  que inciden con una velocidad de 1.79 a.u. sobre una lámina de carbono amorfo de 389.5 a.u. de espesor. En la figura 5.3b tenemos la misma distribución pero para la disociación de iones  $H_9^+$  que inciden con una velocidad de 1.55 a.u. sobre una lámina de 229.1 a.u. de espesor. Los símbolos son los datos experimentales de Farizon *et al.* [1992] y los histogramas son los resultados de nuestra simulación.

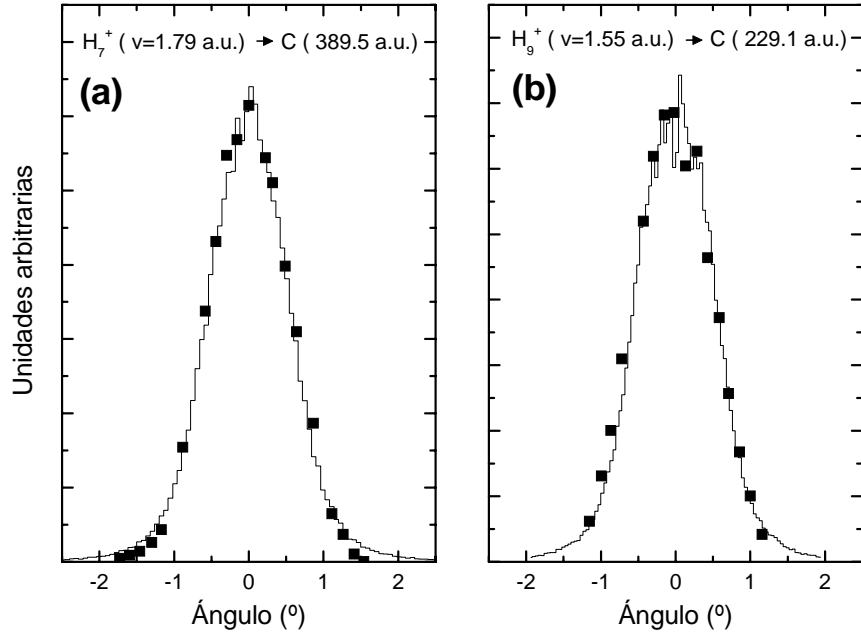


Figura 5.3: Distribución de ángulo a la salida de la lámina para los átomos de hidrógeno  $H^0$  procedentes de la disociación de agregados  $H_n^+$  que inciden con una velocidad  $v$  sobre una lámina de carbono amorfo de espesor  $D$ . Los símbolos son datos experimentales [Farizon *et al.* 1992] y los histogramas son el resultado de nuestra simulación. (a) Para  $H_7^+$ ,  $v = 1.79 \text{ a.u.}$  y  $D = 389.5 \text{ a.u.}$ ; (b) para  $H_9^+$ ,  $v = 1.55 \text{ a.u.}$  y  $D = 229.1 \text{ a.u.}$

El ancho de las distribuciones de ángulo está relacionado directamente con la repulsión coulombiana entre los fragmentos disociados. Como en este caso se trata de distribuciones justo a la salida de la lámina, estamos hablando de la repulsión coulombiana que se produce en el interior de la lámina. El hecho de que sólo recojamos átomos de hidrógeno no quiere decir que no hayan experimentado ninguna repulsión en el interior, ya que en el interior del material se producen cambios en el estado de carga de estos átomos dando lugar a una repulsión en aquellos momentos en los que el estado de carga de ambos átomos es positivo.

Por otro lado, estas distribuciones de ángulo de los átomos de hidrógeno a la salida de la lámina son las mismas con las que llegan al detector, ya que todos los fragmentos disociados conservan su estado de carga cuando salen

de la lámina y viajan por el vacío. Como los átomos de hidrógeno tienen un estado de carga nulo, no experimentarán ninguna repulsión adicional desde la salida de la lámina hasta su llegada al detector.

Vemos que el resultado de nuestra simulación concuerda bastante bien con los datos experimentales, tanto en el caso de la figura 5.3a como en el caso de la figura 5.3b; aunque la distribución experimental para los átomos disociados del agregado  $H_9^+$  es ligeramente más ancha que la calculada. Esta discrepancia la analizaremos mejor al estudiar cómo varía el ancho de las distribuciones para una misma velocidad incidente del agregado, en función del número de constituyentes del agregado de  $H_9^+$ .

Si representamos el ancho a mitad de altura (FWHM) de la distribución de ángulo experimental en función del número de hidrógenos del agregado, para distintas velocidades y para un espesor de la lámina de carbono de 229.1 a.u., obtenemos la figura 5.4.

Para los cálculos con nuestro programa de simulación primero hemos considerado una cierta probabilidad de captura electrónica en el interior de la lámina, lo cual hace que haya una cierta fracción de neutros en el interior,  $\phi_{0\text{int}}$ , cuyos valores obtuvimos en el apartado anterior. Pero observamos en la figura 5.4 que el ancho de las distribuciones de ángulo de nuestro cálculo es mucho menor que los datos experimentales para  $n > 1$ ; es decir, la existencia de una fracción de neutros en el interior produce una disminución en la repulsión coulombiana, tal como puede apreciarse en la figura 5.4 para  $v = 1.55$  a.u., donde se pueden comparar los resultados considerando una posibilidad de una captura electrónica sólo en la superficie (fracción de átomos de hidrógeno en la superficie  $\phi_{0\text{sup}} = 0.4$ ) o teniendo en cuenta la posibilidad de captura electrónica en el interior de la lámina (fracción de átomos de hidrógeno en el interior  $\phi_{0\text{int}} = 0.4$ ).

Esto podría ser debido a que la repulsión coulombiana dentro del material no fuera una interacción puntual, tal como la implementamos en nuestro programa de simulación, y por tanto igual a cero para los átomos de hidrógeno, sino que la extensión espacial de la densidad de carga de estos átomos hiciera que la repulsión coulombiana no sea cero para distancias interprotónicas cortas. Esto último sería difícil de incorporar en el programa, por este motivo hemos realizado los cálculos con una probabilidad de captura electrónica que se produce en la superficie del material en su totalidad,  $\phi_{0\text{sup}}$ .

En este caso los valores concretos de  $\phi_{0\text{sup}}$  no importan en cuanto a las distribuciones de ángulo de los átomos de hidrógeno, ya que sea cual sea la fracción de  $H^0$ , éstos no van a sufrir ninguna cambio en su dirección desde la

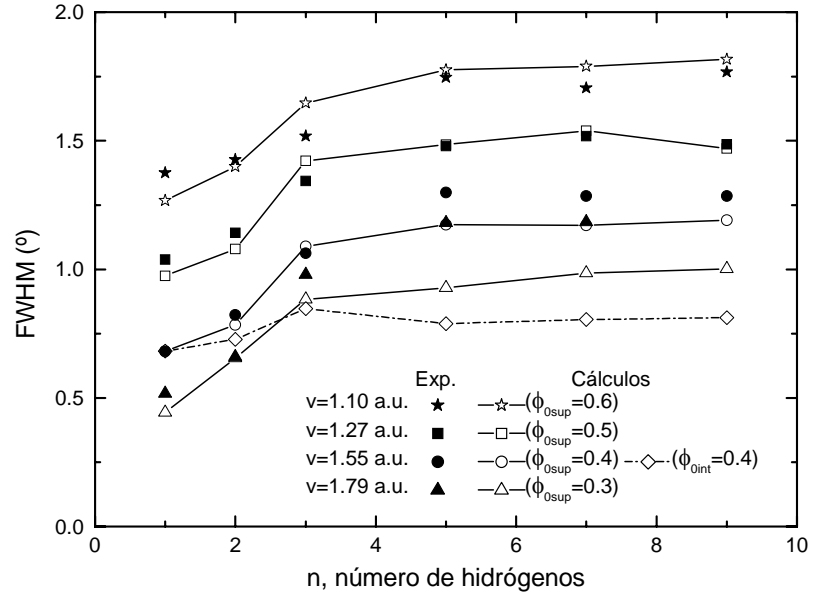


Figura 5.4: Variación del FWHM de la distribución angular de átomos de hidrógeno  $H^0$  a la salida de una lámina de carbono amorfo de 229.1 a.u. de espesor, en función del número de hidrógenos del agregado. Los símbolos rellenos son los resultados experimentales para diferentes velocidades [Farizon *et al.* 1992] y los símbolos huecos son nuestros cálculos correspondientes con una fracción de  $H^0$  sólo en la superficie ( $\phi_{0sup}$ ) o en el interior ( $\phi_{0int}$ ).

superficie de la lámina hasta la llegada al detector, ya que no experimentan ninguna repulsión coulombiana. La diferencia entre considerar una fracción de  $H^0$  en el interior o en la superficie radica en que para una fracción en la superficie, los fragmentos han viajado por el interior siempre como protones y por tanto han sufrido más la repulsión coulombiana antes de salir de la lámina.

Vemos en la figura 5.4 que nuestros resultados obtenidos utilizando una probabilidad de captura en la superficie concuerdan bastante bien para las velocidades más bajas, pero que no dan buenos resultados para los agregados mayores a velocidades más altas. De todas formas, vemos una tendencia a la “saturación” para  $n \geq 5$  tanto experimentalmente como teóricamente, para todas las velocidades.

Este hecho puede estar relacionado con la fuerte dependencia de la repulsión coulombiana con la geometría inicial. Mientras que para los cálculos de los iones  $H_2^+$  y  $H_3^+$  hemos utilizado una distribución de distancias internucleares según el estado vibracional inicial del ion (apartados 3.1 y 4.1), para los cálculos con los iones  $H_5^+$ ,  $H_7^+$  y  $H_9^+$  hemos utilizado las distancias internucleares que hacen mínima la energía potencial del ion (apartado 5.1). En consecuencia, las distancias iniciales de los iones mayores son más pequeñas y por lo tanto la repulsión coulombiana mayor. Por otra parte, los buenos resultados a bajas velocidades para los iones mayores indican que las distancias de la geometría inicial utilizadas son bastante buenas, y que el estado inicial del ion es el de mínima energía. Otra cosa que podemos notar es que se produce una “saturación” de la repulsión coulombiana para  $n \geq 5$ , esto es así porque a partir del agregado  $H_5^+$  añadimos unidades  $H_2^+$  a la unidad central  $H_3^+$ , y por tanto habrá una repulsión extra entre las unidades  $H_2^+$  y la unidad  $H_3^+$ . La repulsión sólo depende de las distancias y como las distancias entre las unidades  $H_2^+$  y la unidad central son similares para todos los agregados con  $n \geq 5$ , todos tendrán la misma repulsión.

Ahora nos centraremos en el estudio del frenado de estos agregados. Como se ha dicho antes, la pérdida de energía global del agregado se debe fundamentalmente al frenado electrónico y en una menor parte a las colisiones nucleares. El frenado que utilizaremos en el cálculo teórico a través de nuestra simulación se basa en el formalismo dieléctrico y en una función de pérdida energética desarrollada por nuestro grupo [Abril *et al.* 1994, 1998, Planes *et al.* 1996, Moreno-Marín *et al.* 2002].

Como en este capítulo suponemos que el agregado se disocia completamente en sus protones sólo tendremos que estudiar el frenado y los efectos de vecindad electrónica de estos protones. Es más, si los protones capturan un electrón del medio tendremos un nuevo estado de carga y, por consiguiente, un nuevo tipo de frenado y unos nuevos efectos de vecindad electrónica. Usaremos los valores de la fracción  $\phi_0^i$  de  $H^0$  de los fragmentos obtenidos en el apartado 5.2.

El estudio del frenado y de los efectos de vecindad electrónica de los diferentes estados de carga del protón también ha sido tratado anteriormente por nuestro grupo [Barriga-Carrasco 2000]. Una forma de estudiar la pérdida de energía y ver los efectos de vecindad es representar el frenado global del agregado relativo al frenado del protón.

En la figura 5.5a se pueden ver los cálculos realizados por Farizon *et al.* [1992], junto a los cálculos realizados por nuestro grupo para una velocidad

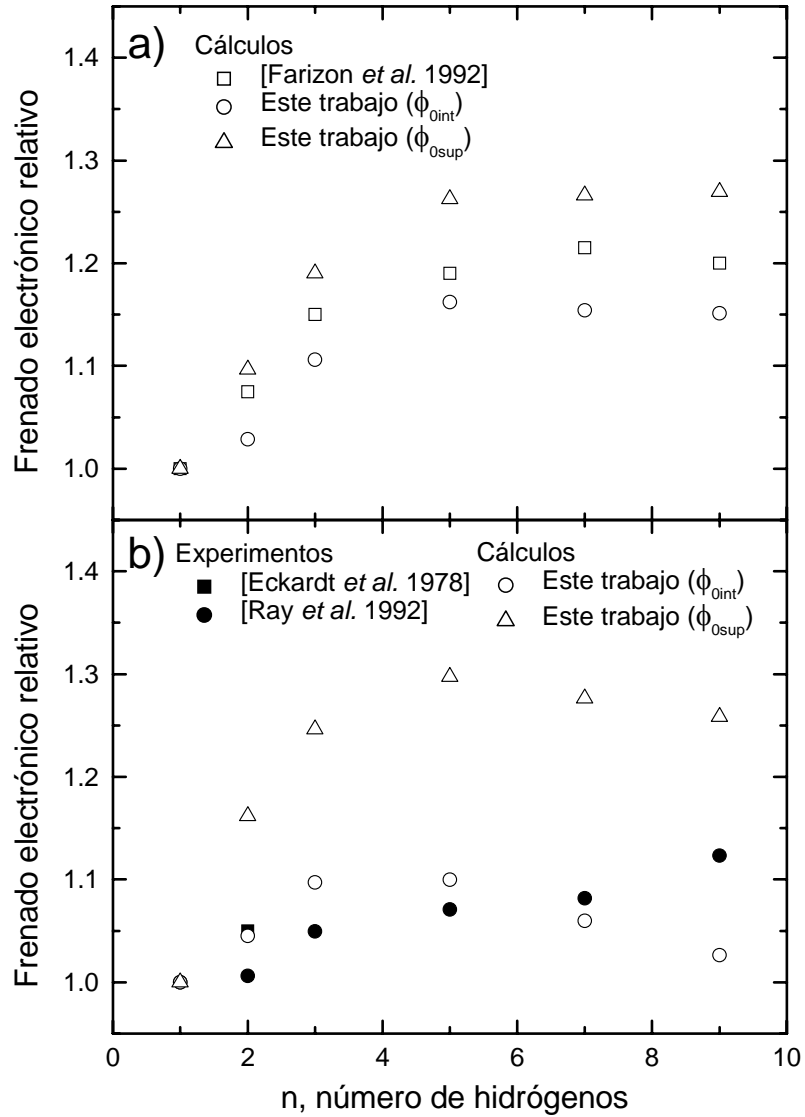


Figura 5.5: Frenado electrónico relativo al frenado del  $H^+$  resultante del paso de agregados de hidrógeno por una lámina de carbono amorfo, en función del número de hidrógenos del agregado, para una velocidad de 1.55 a.u. Los símbolos huecos son los cálculos de Farizon *et al.* [1992] y los nuestros para una  $\phi_{0sup}$  y  $\phi_{0int}$  obtenidas en el apartado 5.2. Los símbolos rellenos son los resultados experimentales de Eckardt *et al.* [1978] y Ray *et al.* [1992]. El espesor de la lámina es: (a) 229.1 a.u. y (b) 343.7 a.u.

de 1.55 a.u. y una lámina de carbono amorfo de espesor 229.1 a.u. Hemos realizado nuestros cálculos para el caso en el que consideramos una fracción de neutros en el interior del material,  $\phi_{0\text{int}}$ , y para el caso de una fracción de neutros sólo en la superficie,  $\phi_{0\text{sup}}$  según los valores obtenidos en el apartado anterior 5.2. Vemos que, para el caso de la fracción en el interior, el frenado global relativo es siempre menor que para el caso de la fracción en la superficie, para todos los agregados de hidrógeno. Esto se debe a que si un fragmento viaja cierto tiempo por el interior como átomo de hidrógeno se frena menos que un protón, a la vez que sus efectos de vecindad son también menores [Barriga-Carrasco 2000].

Una característica común a todos los cálculos de la figura 5.5a es que hay una especie de “saturación” para los agregados con  $n \geq 5$ , al igual que sucedía para el ancho de las distribuciones de ángulo (figura 5.4). Esta “saturación” se puede deber a que las distancias de la geometría inicial de los agregados mayores es la del estado fundamental y no una distribución de las distancias medias de los estados excitados, y también a la repulsión coulombiana extra entre las unidades  $H_2^+$  -  $H_3^+$  que componen estos agregados mayores, como ya explicamos para el caso de la distribución de ángulos.

De todas formas vemos una discrepancia entre los valores obtenidos por Farizon *et al.* [1992] y los nuestros, tanto cuando usamos una fracción de  $H^0$  en el interior como en la superficie. Una forma de saber cuál de los cálculos es el correcto es su posterior comparación con los resultados experimentales. En la figura 5.5b podemos ver los resultados experimentales de Eckardt *et al.* [1978] y de Ray *et al.* [1992] para el frenado electrónico relativo del agregado en función del número de sus hidrógenos, para una velocidad de 1.55 a.u. y una lámina de carbono amorfo de espesor 343.7 a.u.

Añadimos a esta figura los resultados de nuestra simulación para una fracción de neutros en el interior del material,  $\phi_{0\text{int}}$ , y para una fracción de neutros sólo en la superficie,  $\phi_{0\text{sup}}$ . Vemos que el cálculo que mejor ajusta es para el caso cuando utilizamos una fracción de neutros interior,  $\phi_{0\text{int}}$ . Para el caso del agregado  $H_2^+$  obtenemos casi el mismo resultado que el de Eckardt *et al.* [1978], que discrepa un poco del valor obtenido por Ray *et al.* [1992]. Para los otros agregados notamos que el frenado relativo experimental aumenta siempre con el número de hidrógenos del agregado, mientras que para nuestros cálculos aumenta hasta un valor máximo para el agregado  $H_5^+$  y después disminuye. Esto se debe a que la repulsión característica de la distancia  $D$  entre las unidades  $H_2^+$  y la unidad central  $H_3^+$  disminuye (tabla 5.1).

Finalmente, dentro de esta sección, representaremos las distribuciones de distancias relativas entre los fragmentos procedentes de la disociación de los agregados de hidrógeno después de atravesar una lámina de carbono amorfo. En este caso, no disponemos de resultados experimentales por lo que sólo compararemos nuestros cálculos con los obtenidos por Farizon *et al.* [1992].

En la figura 5.6 podemos ver los histogramas de las distancias  $R_{ij}$  entre fragmentos a la salida de una lámina de carbono amorfo de 229.1 a.u. de espesor; la velocidad inicial de los diferentes agregados es de 1.55 a.u. Para cada agregado haremos nuestros cálculos de dos maneras diferentes: incluyendo la correspondiente fracción de neutros durante el viaje en el interior del material (línea discontinua) o incluyendo esta fracción de neutros sólo en la superficie (línea punteada) según los valores obtenidos en el apartado 5.2.

Vemos que para todos los casos aparecen unos ciertos picos en las distribuciones. Estos picos indican la evolución de las distintas distancias (pequeñas y grandes) de la estructura inicial del agregado. Debido a las colisiones nucleares sólo podemos distinguir varias de estas distancias. De todas formas, ninguna de nuestras dos distribuciones de distancias se acerca al ancho calculado por el grupo de Farizon, pero es más ancha cuando incluimos la fracción de neutros sólo en la superficie.

Estas discrepancias nos hacen pensar en si las distancias iniciales usadas son las mismas en los dos casos y qué efecto produciría la modificación de las mismas. Si para el agregado más sencillo,  $H_2^+$ , utilizamos una distribución de distancias iniciales en forma de gaussiana con una cierto ancho, definido por su desviación típica  $\sigma$ , vamos a comprobar cómo afecta el cambio de este valor de  $\sigma$  a la distribución de distancias finales. La figura 5.7 muestra las distribuciones de distancias interprotónicas finales para el cálculo de Farizon *et al.* [1992] y para nuestros resultados con dos distribuciones gaussianas de distancias interprotónicas iniciales del ion  $H_2^+$  con distinta desviación típica  $\sigma$ .

Vemos que para una distribución inicial con una desviación típica igual a la que utiliza el grupo de Lyon,  $\sigma = 0.76$  a.u., nuestro cálculo nos da una distribución más estrecha y con un valor medio un poco menor. En cambio, cuando utilizamos una desviación típica mayor (por ejemplo el doble  $\sigma = 1.52$  a.u.), nuestro resultado está más próximo al obtenido por el grupo de Lyon. Esto nos viene a decir que las distribuciones de distancias interprotónicas iniciales no son iguales o que nuestra repulsión coulombiana está más apantallada que la del grupo de Lyon. También hemos de decir que el valor de la desviación típica  $\sigma$  que obtenemos de ajustar la distribución de distancias



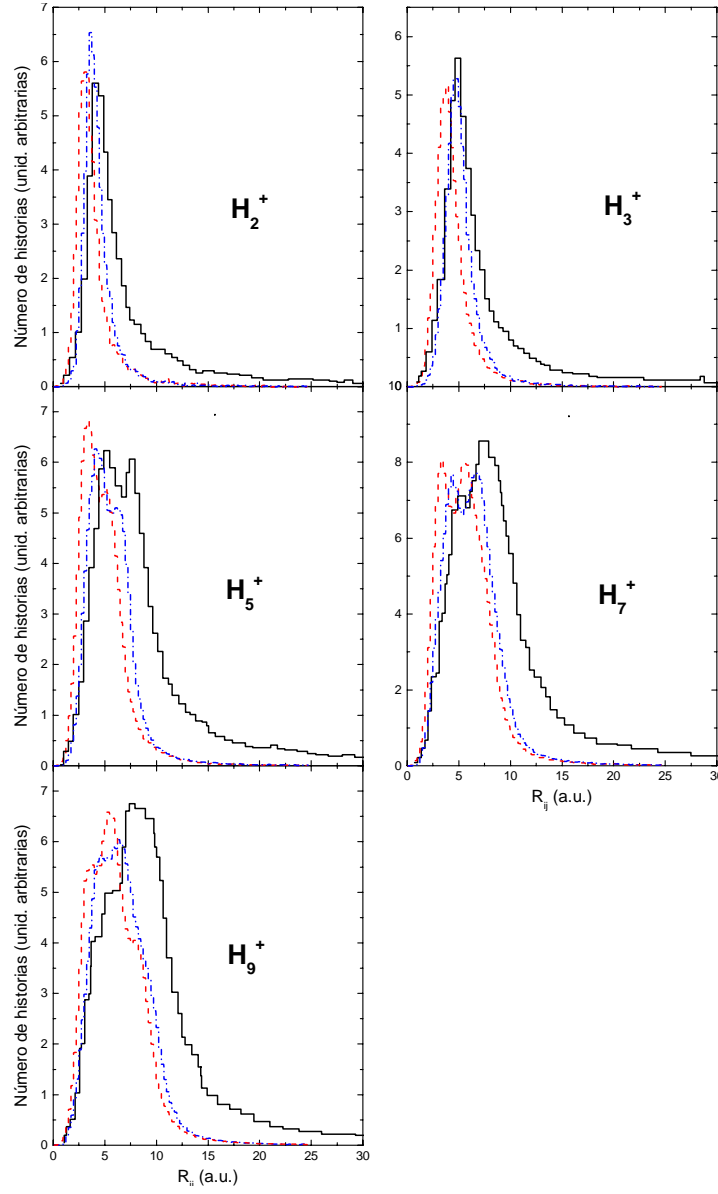


Figura 5.6: Comparación entre las distribuciones de distancias interprotónicas a la salida de la lámina para el paso de diferentes agregados de hidrógeno por una lámina de carbono amorfo de 229.1 a.u. de espesor con una velocidad incidente de 1.55 a.u. Las líneas corresponden a los cálculos de Farizon *et al.* [1997] (—) y a nuestra simulación con  $\phi_{0int} = 0.4$  (- - -) y  $\phi_{0sup} = 0.4$  (- · -).

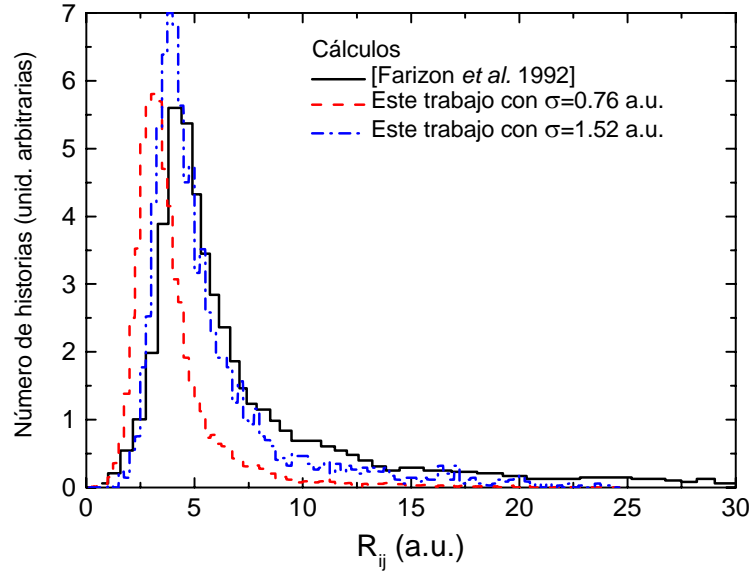


Figura 5.7: Distribuciones de distancias interprotónicas a la salida de la lámina cuando un haz de  $H_2^+$  incide con una velocidad  $v = 1.55$  a.u. sobre una lámina de carbono amorfo de 229.1 a.u. de espesor. La línea continua corresponde al cálculo de Farizon *et al.* [1992] y las líneas discontinuas representan nuestros resultados para dos desviaciones típicas diferentes ( $\sigma = 0.76$  y 1.52 a.u., respectivamente) de la distribución gaussiana de distancias interprotónicas iniciales del ion  $H_2^+$ .

iniciales teóricas calculadas por el método de Franck-Condon (apéndice C) a una gaussiana es  $\sigma \simeq 0.4$  a.u., y este valor es inferior al que utiliza el grupo de Lyon,  $\sigma = 0.76$  a.u.

En conclusión, vemos que el estudio del estado de carga y sus efectos es fundamental para tratar de explicar los diferentes espectros de ángulos, energías y distancias de los fragmentos disociados de los diferentes agregados de hidrógeno. Nos hemos encontrado con dos resultados contrapuestos. El análisis de las distribuciones de ángulos y de distancias internucleares nos ha llevado a pensar que no hay una cierta fracción de fragmentos neutros cuando éstos viajan en el interior de la lámina, mientras que el análisis de las distribuciones de energías nos hace pensar lo contrario.

Esto podría ser debido a que cuando calculamos el frenado con nuestro programa de simulación tratamos a los fragmentos con una cierta densidad

de carga, mientras que cuando calculamos la repulsión coulombiana, principal causante de la desviación de la trayectoria inicial del fragmento y del aumento de las distancias internucleares, tratamos a los fragmentos como puntuales. Una forma de resolverlo sería el tratar a los proyectiles teniendo en cuenta la extensión espacial de su densidad de carga cuando analizamos la explosión coulombiana, lo cual haría que los átomos de hidrógeno sufrieran cierta repulsión incrementando la repulsión global en el interior de la lámina.

# Resumen, conclusiones y publicaciones

En esta memoria hemos desarrollado un tratamiento teórico en combinación con un programa de simulación para analizar una gran cantidad de experimentos realizados sobre la penetración de agregados iónicos de hidrógeno ( $H_n^+$ ,  $n = 2, 3, 5, 7, 9$ ) en láminas delgadas. El interés en el estudio del tránsito de los agregados de hidrógeno  $H_n^+$  se debe a que son los proyectiles moleculares más simples, pero a la vez en ellos se dan todas las interacciones básicas de los agregados moleculares. En este trabajo nos hemos centrado en el análisis de las interacciones entre los proyectiles moleculares y el medio frenante, más que en el análisis del blanco material.

Para dar cuenta de las interacciones que sufren los proyectiles  $H_2^+$ , nuestro grupo de investigación había desarrollado un programa de simulación [Denton *et al.* 1996, 1997, Denton 1997].

En esta memoria hemos implementado en el programa de simulación nuevas interacciones para tratar de describir más proyectiles moleculares de hidrógeno y con nuevos procesos que describan mejor estas interacciones. Hemos puesto especial énfasis en la transmisión y la recombinación de los proyectiles moleculares originales, y en los procesos de pérdida-captura electrónica que sufren los fragmentos disociados de estos iones moleculares. El hecho de que los proyectiles moleculares se comporten de manera distinta cuando viajan sin disociarse que cuando viajan disociados y de que la captura-pérdida electrónica cambie el estado de carga de los fragmentos disociados nos ha llevado a observar nuevos tipos de sucesos entre los proyectiles y el medio material, y entre los proyectiles y los otros fragmentos procedentes de una misma disociación.

Las unidades que se han utilizado a lo largo de todo este trabajo son las unidades atómicas ( $m_e = e = \hbar = 1$ ,  $\epsilon_0 = 1/4\pi$ , apéndice A), salvo que se

diga explícitamente lo contrario.

## Fundamentos teóricos

En el capítulo 1 hemos discutido las interacciones que sufre un proyectil molecular al viajar a través de una lámina. Dividimos estas interacciones en dos grupos: las interacciones propias de proyectiles atómicos y las interacciones adicionales que experimentan los proyectiles moleculares. Estudiamos cada fragmento de la disociación como si fuera un proyectil atómico y después añadimos las interacciones moleculares con los otros fragmentos de la misma disociación.

### Interacciones del proyectil atómico

En las interacciones propias de los proyectiles atómicos se pueden distinguir dos efectos principales: la interacción con el medio electrónico del material y la interacción con los núcleos del material.

Las interacciones del proyectil con el medio electrónico del material las describimos mediante el formalismo dieléctrico, en el cual se describe la respuesta del medio electrónico a perturbaciones externas mediante la función dieléctrica  $\epsilon(k, \omega)$ . En este trabajo se emplea un modelo basado en una combinación lineal de la función de pérdida de energía construida a partir de la función dieléctrica propuesta por Mermin [1970] para las excitaciones de los electrones externos y una aproximación hidrogénica de la intensidad generalizada de oscilador para electrones internos [Moreno-Marín *et al.* 2002], que permite describir adecuadamente las propiedades ópticas y los espectros de pérdidas de energía de materiales reales.

El poder de frenado del material para una densidad de carga  $\rho(\vec{r}, t)$  que viaja con una velocidad constante  $\vec{v}$  es:

$$S_p = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho^2(k),$$

donde  $k$  y  $\omega$  son el módulo del momento  $\vec{k}$  y la energía transferida que pueden tener las excitaciones del medio electrónico, y  $\rho(k)$  es la transformada de Fourier de la densidad de carga del proyectil.

El frenado electrónico es un proceso estadístico (figura 1.1), por lo que es conveniente definir el “straggling”, que es la varianza de la pérdida de energía

por unidad de recorrido:

$$\Omega^2 = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho^2(k).$$

Otro efecto electrónico es el de la pérdida y captura electrónica. Cuando el proyectil incide sobre el material, pierde y gana electrones durante todo su recorrido en el material modificando su estado de carga. Los estados de carga de la disociación total de los agregados de hidrógeno son  $H^+$ ,  $H^0$  y el  $H^-$ . Para el rango de energías que estudiamos en este trabajo se puede despreciar la posibilidad del estado de carga  $H^-$  debido a la dificultad que supone la captura de un segundo electrón [de Castro Faria *et al.* 1986a]. Si la lámina es suficientemente gruesa se establece un equilibrio entre los procesos de pérdida y captura electrónica, con unas fracciones  $\phi_+$  y  $\phi_0$  para los estados de carga  $H^+$  y  $H^0$ , respectivamente.

Las interacciones nucleares se deben a las colisiones elásticas entre el proyectil y los núcleos de los átomos que forman el material frenante, y son las causantes del cambio de la dirección del proyectil y de una pequeña pérdida de energía, mucho menor que la pérdida de energía debida al frenado electrónico en el rango de energías que estudiamos.

Para el tratamiento de este efecto se ha utilizado la teoría clásica de la dispersión. Para las interacciones nucleares, tratamos a los proyectiles como núcleos. Tanto los núcleos de los proyectiles como los núcleos del material tienen una cierta sección eficaz de impacto.

En el sistema centro de masas, el ángulo  $\theta$  con que es dispersado un proyectil con una energía  $E$  y una masa  $M$  por un núcleo del material de masa  $M_n$  viene dado por [Goldstein 1977]:

$$\theta = \pi - 2s \int_{R_{\min}}^\infty \frac{dr}{r^2 \sqrt{1 - V(r)/E_r - s^2/r^2}},$$

donde  $E_r = 4MM_nE/(M + M_n)^2$  es la máxima energía transferible,  $s$  es el parámetro de impacto,  $r$  es la distancia entre el proyectil y el centro de dispersión y  $R_{\min}$  es la distancia de mínimo acercamiento, que se obtiene haciendo cero el radicando del denominador de la ecuación anterior. La energía de interacción  $V(r)$  procede de un potencial coulombiano apantallado de tipo Thomas-Fermi [Nastasi *et al.* 1996]:

$$V(r) = \frac{ZZ_n}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right),$$

con la distancia de apantallamiento universal [Ziegler *et al.* 1985]:

$$a = 0.8854/(Z^{0.23} + Z_n^{0.23}).$$

Un esquema aclarativo de esta interacción se puede ver en la figura 1.2.

La energía  $T$  transferida al núcleo, y por tanto perdida por el proyectil, está relacionada con el ángulo de dispersión  $\theta$  mediante [Goldstein 1977]:

$$T = \frac{4MM_nE}{(M + M_n)^2} \sin^2(\theta/2),$$

por lo que a mayor ángulo de dispersión mayor será la energía perdida.

## Interacciones del proyectil molecular

Cuando los proyectiles moleculares se disocian en sus componentes, éstos además de experimentar las mismas interacciones que los proyectiles atómicos, sufren otras interacciones debidas a la vecindad (o proximidad) de los fragmentos disociados de la misma molécula.

Las interacciones de vecindad propias de los proyectiles moleculares son dos: los efectos de vecindad causados por un fragmento sobre otro a través del medio electrónico y la fuerza coulombiana entre los fragmentos.

El efecto de vecindad a través del medio electrónico del material es analizado mediante el formalismo dieléctrico. La fuerza coulombiana es analizada por separado. Mientras que para las interacciones electrónicas hemos tratado a los proyectiles según su densidad de carga, para la “explosión coulombiana” hemos tratado a los proyectiles como proyectiles puntuales.

Las fuerzas de vecindad tienen simetría cilíndrica respecto a la velocidad del ion que produce la fuerza. Las fuerzas de vecindad inducidas por un ion (densidad de carga  $\rho_{\text{ext1}}$  moviéndose a una velocidad  $\vec{v}$ ) sobre otro ion (densidad de carga  $\rho_{\text{ext2}}$  y situado a unas distancias  $z'$  y  $\rho$  paralela y perpendicular a la velocidad  $\vec{v}$ , respectivamente, figura 1.3), son [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$\begin{aligned} F_{z'}(z', \rho) = & \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_0(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ & \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \sin(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ & \left. + \cos(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\} \end{aligned}$$

$$F_\rho(z', \rho) = \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega J_1(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \\ \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \cos(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ \left. - \sin(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\}$$

donde  $J_0(x)$  y  $J_1(x)$  son las funciones de Bessel de primera especie de orden 0 y 1, respectivamente [Abramowitz y Stegun 1972].

En la figura 1.4 se representan las fuerzas de vecindad, definidas por las ecuaciones anteriores, en función de las distancias  $z'$  y  $\rho$  para tres velocidades distintas,  $v = 0.7, 4.47$  y  $23.66$  a.u. en una lámina de carbono amorfo.

Otro efecto de vecindad electrónico es la influencia en los estados de carga de sus acompañantes. Los estados de carga de los fragmentos moleculares difieren de cuando los iones viajan solos [Maor *et al.* 1985, de Castro Faria *et al.* 1986b, Heredia-Avalos *et al.* 2001]. Cuando los fragmentos (normalmente cargados positivamente) están todavía muy juntos se produce un incremento en la captura electrónica, mientras que cuando están más separados se vuelve a unos valores típicos de iones aislados.

Las fuerzas coulombianas entre los fragmentos disociados son de repulsión o nulas, según los estados de carga que estudiamos. La repulsión aumenta la distancia entre fragmentos y los desvía de su trayectoria inicial.

## Métodos de simulación

En el capítulo 2 hemos explicado métodos para implementar en nuestro programa de simulación las interacciones analizadas en el capítulo 1.

En la mayoría de experimentos las moléculas llegan a la lámina con una orientación al azar, por lo que hemos establecido en nuestro programa de simulación un método para que la orientación inicial de la molécula sea aleatoria. El método empleado es el del sorteo aleatorio de los ángulos de Euler que caracterizan la orientación molecular.

La dinámica molecular es un método de simulación numérica que permite seguir la evolución de un sistema de partículas a partir de las ecuaciones de Newton. Si conocemos las posiciones y las velocidades en un instante de tiempo  $t$ , y sabemos qué fuerzas actúan sobre el sistema, obtendremos las posiciones y las velocidades en un instante inmediatamente posterior,  $t + \Delta t$ .



Por ejemplo, el valor de la fuerza de frenado electrónico se obtiene a partir del sorteo de una distribución gaussiana cuyo valor medio es el poder de frenado  $\bar{S}_p$ , ecuación (1.1), con una varianza  $\Omega^2/\Delta z$ , donde  $\Omega^2$  es el straggling electrónico, ecuación (1.3), y  $\Delta z = v \Delta t$ , siendo  $v$  la velocidad del proyectil en el intervalo de tiempo  $\Delta t$ .

$$\mathcal{P}(S_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sqrt{\Omega^2/\Delta z}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \frac{(S_p - \bar{S}_p)^2}{\Omega^2/\Delta z} \right].$$

Este valor se usará junto a los valores de las fuerzas de vecindad y coulombiana en el algoritmo de dinámica molecular. Las fuerzas de vecindad, al igual que el valor medio del autofrenado y el valor del straggling, las calculamos a priori, ya que el programa de simulación tardaría mucho tiempo en calcular en cada instante de tiempo las integrales especificadas en las ecuaciones (1.11) y (1.12).

El método utilizado para la dispersión nuclear se basa en el modelo de colisión binaria descrito por Moller *et al.* [1975] y en el modelo de simulación Monte Carlo desarrollado por Zajfman *et al.* [1990].

En otro apartado presentamos un método analítico para considerar la explosión coulombiana pura, es decir sin que haya ningún otro tipo de interacción, entre dos fragmentos. Este método nos sirve para hallar el módulo, a través de la conservación de energía, y la dirección, a través de la conservación del vector de Runge-Lenz (definido por Englefield [1972]), de las velocidades de estos dos fragmentos cuando el vector internuclear entre ambos se hace infinito. También analizamos el valor de la distancia internuclear para tiempos muy grandes.

## Tránsito de iones $H_2^+$

La molécula de  $H_2^+$  está compuesta por dos protones separados por una distancia  $R$  y por un electrón exterior. La distancia entre estos dos protones depende de cuál es el nivel de vibración de la molécula. El nivel de vibración estará relacionado tanto con el proceso de creación como con el proceso de aceleración de la molécula de  $H_2^+$ . Su carga positiva se debe a que se ha extraído un electrón (ionización) a la molécula de  $H_2$  para ser acelerada a través de un campo eléctrico.

## Geometría inicial

Las barras de la figura 3.1 representan la probabilidad de las diferentes distancias internucleares medias para los veinte estados vibracionales ligados de la molécula de  $\text{H}_2^+$  calculados a partir del principio de Franck-Condon (apéndice C).

Hemos caracterizado la geometría inicial de la molécula de  $\text{H}_2^+$  a partir de un sorteo de la distancia internuclear según su distribución de probabilidad obtenida a partir del principio de Franck-Condon y un sorteo de la orientación inicial según el método de los ángulos de Euler.

## Vida media

Hemos distinguido dos procesos que contribuyen a la detección de moléculas de  $\text{H}_2^+$  a la salida de la lámina: la transmisión de la molécula original y la recombinación de los protones disociados de la molécula original al capturar un electrón a la salida de la lámina. Según Cue *et al.* [1980a, 1980b] la fracción  $Y$  de iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos sólo depende del tiempo de tránsito molecular  $t$  en la lámina, según la relación:

$$Y(t) = (1 - B) \exp(-t/\tau) + B \exp(-bt),$$

donde  $B$ ,  $b$  y  $\tau$  son constantes para una cierta velocidad y para un cierto material.

El primer término a la derecha de la ecuación anterior muestra la fracción de iones  $\text{H}_2^+$  originales y el segundo la fracción de iones  $\text{H}_2^+$  formados por recombinación. Como  $B \ll 1$  para altas energías,  $\tau$  es interpretada como la vida media de la molécula en el sólido.

En la figura 3.5 se muestran las fracciones experimentales tanto del grupo de Lyon [Cue *et al.* 1980a, 1980b] como del grupo de Kyoto [Susuki *et al.* 1994]. No vemos porqué el valor de la vida media hallada experimentalmente a mayor velocidad es más alto, por lo que intentamos resolver este dilema fijándonos en el comportamiento de la transmisión del átomo de hidrógeno.

Comparamos en la figura 3.6 la vida media del átomo de hidrógeno calculada con las fórmulas usadas por Château-Thierry *et al.* [1976] de la teoría Brandt-Sizmann (BS) con los valores obtenidos anteriormente para la vida media del ion  $\text{H}_2^+$ .

Por otro lado, se nos ocurre que la vida media del ion  $\text{H}_2^+$  puede estar relacionada con el tiempo de la probabilidad BS conjunta de que un sistema

formado por dos protones y un electrón pierdan el electrón. El resultado lo vemos también en la gráfica representada en la figura 3.6. Este nuevo cálculo se aproxima mucho mejor a la vida media experimental del  $\text{H}_2^+$ , sobre todo para el valor 0.23 fs obtenido por Susuki *et al.* [1994]. Es por esta última razón y por el hecho de los resultados de Susuki son más actuales que escogemos el valor obtenido por este grupo como el valor más adecuado para la vida media del  $\text{H}_2^+$ .

### Frenado electrónico del ion $\text{H}_2^+$

El principal motivo del apartado 3.3 es el cálculo teórico del frenado electrónico del ion molecular  $\text{H}_2^+$  a primer orden de la aproximación de Born y la comparación con los resultados teóricos y experimentales ya publicados.

La densidad de carga del ion  $\text{H}_2^+$  es [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]:

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{r}, t) = Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{R}/2) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t + \vec{R}/2) - \rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t).$$

donde  $Z_1$  es la carga del protón,  $\vec{R}$  la distancia entre protones y  $\vec{v}$  la velocidad del ion  $\text{H}_2^+$ . Utilizamos un modelo gaussiano [Kaneko 1995] para las funciones de onda de la densidad electrónica molecular  $\rho_{\text{el}}$ , ya que el método variacional nos da unos valores para el mínimo de potencial  $U(R_m)$  y para su correspondiente distancia internuclear,  $R_m = 2.05$  a.u., próximos a los valores exactos [Levine 1977]:

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = N_G [\varphi_G(\vec{r} - \vec{R}/2) + \varphi_G(\vec{r} + \vec{R}/2)],$$

donde  $\varphi_G(\vec{r})$  es la función de onda gaussiana normalizada:

$$\varphi_G(\vec{r}) = \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/4} \exp(-\alpha r^2).$$

$\alpha = 0.43$  a.u. es el parámetro orbital y  $N_G$  es el factor de normalización para este orbital molecular:

$$N_G = \left\{ \frac{1}{2 [1 + \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}.$$

Para el cálculo del poder de frenado, ecuación (1.1), y del straggling, ecuación (1.3), necesitamos la transformada de Fourier de la densidad de carga del ion  $\text{H}_2^+$ :

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{k}) = 2Z_1 \cos(\vec{k}\vec{R}/2) - \frac{e^{-k^2/8\alpha}[\cos(\vec{k}\vec{R}/2) + e^{-\alpha R^2/2}]}{[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]}.$$

Si elevamos  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$  al cuadrado y la promediamos para todo ángulo entre  $\vec{k}$  y  $\vec{R}$ , obtenemos [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}} &= \mathcal{A}^2(k) \frac{1}{2} \left[ 1 + \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + \mathcal{B}^2(k) \\ &\quad - 2\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \frac{\sin(kR/2)}{kR/2}. \end{aligned}$$

donde  $\mathcal{A}(k) = 2Z_1 - \mathcal{C}(k)$ ,  $\mathcal{B}(k) = e^{-\alpha R^2/2}\mathcal{C}(k)$  y  $\mathcal{C}(k) = e^{-k^2/8\alpha}/[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]$ .

En la figuras 3.9a y 3.9b podemos comparar el frenado y el straggling electrónico, respectivamente, obtenido para la molécula de  $\text{H}_2^+$  con el doble del protón. El frenado y el straggling de la molécula de  $\text{H}_2^+$  han sido calculados con nuestra ELF para un orbital molecular gaussiano. Se añaden resultados experimentales que se analizan en apartados posteriores.

## Recombinación del ion $\text{H}_2^+$

Vimos que el segundo término de la ecuación (3.2),  $B \exp(-bt)$ , corresponde a la recombinación de la molécula a partir de sus fragmentos disociados. Este término no tiende a 1 para  $t \rightarrow 0$ , decae más suavemente que el primer término, es decir  $b < 1/\tau$ , y depende fuertemente de la velocidad del ion molecular. La diferencia entre estos dos regímenes la podemos observar en la figura 3.10 para tiempos de tránsito grandes.

La recombinación depende de que los dos protones disociados de la molécula original capturen un electrón a la salida de la lámina. No sólo eso, sino que para que se forme la molécula de  $\text{H}_2^+$  se necesita que los dos protones y el electrón capturado formen un estado ligado. Nosotros hemos considerado que la recombinación sólo sucede para el estado electrónico fundamental  $1s\sigma_g$  molecular del ion molecular  $\text{H}_2^+$ .

Para que el sistema quede ligado, la energía interna del sistema formado por los dos protones y el electrón debe ser menor que el máximo del potencial efectivo de disociación (figura 3.11), es decir [Garcia-Molina y Barriga-Carrasco 2003]:

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2}\mu v^2 + U_{\text{eff}}(R, v) = \frac{1}{2}\mu v^2 + U(R) + \frac{L^2}{2\mu R^2},$$

$$E_{\text{int}} < U_{\text{eff máx}}(R, v) \Rightarrow \text{recombinación},$$

$$E_{\text{int}} > U_{\text{eff máx}}(R, v) \Rightarrow \text{no recombinación},$$

donde  $\mu$ ,  $v$  y  $L$  son la masa reducida, el módulo de la velocidad relativa y el módulo del momento angular relativo,  $\vec{L} = \mu \vec{R} \times \vec{v}$ , respectivamente. Además el valor de la distancia internuclear  $R$  ha de estar entre los valores de los puntos de retroceso clásicos del pozo de potencial efectivo de disociación.

Si comparamos los resultados obtenidos mediante nuestro programa de simulación de dinámica molecular con los resultados experimentales vemos que la concordancia es bastante aceptable (figura 3.12). Para tiempos de tránsito grandes el cambio en la pendiente de la gráfica logarítmica indica el proceso de recombinación, para tiempos de tránsito pequeños, la recombinación queda enmascarada por la transmisión original.

Si normalizamos la recombinación al doble de la fracción de neutros a esa velocidad se pueden reducir todas las pendientes a una sola (figura 3.13). Se ve una pequeña diferencia entre la curva teórica y experimental para tiempos de tránsito pequeños, ello es debido a que la fracción de iones  $\text{H}_2^+$  experimental contiene iones  $\text{H}_2^+$  originales.

## Distribuciones de energía de iones $\text{H}_2^+$

También podemos hacer la distinción entre moléculas transmitidas y recombinadas basándonos en la energía perdida ( $E_L$ ) por estas moléculas. Si la energía perdida por la molécula es parecida al frenado electrónico calculado por nosotros en la sección 3.3 ( $E_{L\text{Teo}}$ ) es una molécula original ( $\text{H}_{2\text{Ori}}^+$ ), si la pérdida de energía es parecida a la de dos protones que viajan juntos, es decir al doble del frenado electrónico del protón, es una molécula recombinada ( $\text{H}_{2\text{Re}}^+$ ) [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004].

$$E_L(\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}_{2\text{Ori}}^+) \simeq E_{L\text{Teo}}(\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}_{2\text{Ori}}^+),$$

$$E_L(\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}_{2\text{Re}}^+) \simeq 2 \times E_L(\text{H}^+ \rightarrow \text{H}^+).$$

Las figuras 3.14a, 3.14b y 3.15 muestran las distribuciones de energía experimental y calculadas, mediante nuestro programa de simulación, de los iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos para unas velocidades iniciales y unos espesores de la lámina de carbono amorfo:  $v = 0.7$  a.u. y  $D = 28.36$  a.u.,  $v = 0.7$  a.u. y  $D = 56.71$  a.u. y  $v = 1$  a.u. y  $D = 48.20$  a.u., respectivamente. El frenado y el straggling de la distribución de la pérdida de energía experimental nos dicen que los iones  $\text{H}_2^+$  transmitidos son mayormente recombinados (figuras 3.9a y 3.9b).

Las distribuciones de la distancia internuclear,  $R$ , y del módulo del momento angular,  $L$ , justo en el instante en que el programa detecta la formación de un ion  $\text{H}_2^+$  recombinado se pueden ver en la figura 3.18 para el caso de la velocidad  $v = 0.7$  a.u. y para distintos espesores de la lámina de carbono amorfo.

En las figuras 3.19a y 3.19b se observan dos ejemplos más de las distribuciones de energía pero para espesores 2 y 4.3  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  y una velocidad inicial del haz de  $v = 4.47$  a.u. Obtenemos la energía perdida media para otros espesores entre 2 y 8  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  que representamos en la figura 3.20 junto a los resultados experimentales. Si calculamos el poder de frenado a partir de esta figura y lo añadimos a la figura 3.9a, deducimos que el mecanismo de recombinación es el principal proceso en este experimento. La figura 3.21 presenta el ancho total a mitad de altura (FWHM) al cuadrado en función del espesor de la lámina, de donde podemos obtener el valor siguiente para la raíz cuadrada del straggling:  $\Omega = 1.27 \pm 0.16$  a.u. Si ponemos este valor en la figura comparativa 3.9b, vemos que este valor es más parecido al valor del straggling propio de una transmisión de moléculas  $\text{H}_2^+$  recombinadas.

Finalmente vamos a analizar el experimento de Susuki *et al.* [1994] correspondiente a una velocidad de  $v = 19.6$  a.u. para unos espesores entre 1.5 y 8.5  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]. La figura 3.22 muestra que el número de iones transmitidos decrece rápidamente como el primer término de la parte derecha de la ecuación (3.2), por lo que es un proceso de transmisión original.

En la figura 3.23 mostramos un ejemplo de las distribuciones energéticas, experimental y calculada para una lámina de 915 a.u. de espesor. El poder de frenado que obtenemos de figura es  $1.81 \pm 0.15 \times 10^{-2}$  a.u. Comparando este resultado en nuestra figura 3.9a de referencia notamos que el valor obtenido se acerca más al valor del frenado para el  $\text{H}_2^+$  que para el diprotón, tal como

correspondería a un proceso de transmisión original. El valor para la raíz cuadrada del straggling que obtenemos del ancho de la gráfica es  $\Omega = 1.45 \pm 0.1$  a.u. Este valor está bastante alejado por encima del resultado teórico para el ion  $\text{H}_2^+$ , pero podemos pensar que es debido a que el haz incidente ya tiene un ancho de energía considerable.

## Distribuciones de energía de iones $\text{H}^+$

La figura 3.24 muestra la distribución de energía medida para fragmentos disociados saliendo de una lámina de aluminio de 359 a.u. de espesor en la dirección del haz inicial de iones  $\text{H}_2^+$ , para diversas energías incidentes, centradas en la energía media del espectro [Denton *et al.* 2002]. Además se muestran las distribuciones de energía medidas correspondientes a proyectiles  $\text{H}^+$  a las mismas velocidades incidentes. La comparación de los diferentes espectros de energía, para  $\text{H}_2^+$  y  $\text{H}^+$ , muestra los cambios de los efectos moleculares en función de la energía del haz incidente.

Indicamos en la figura 3.24 con líneas verticales el ancho de energía correspondiente a una hipotética explosión coulombiana en el vacío para una molécula de  $\text{H}_2^+$  con una distancia internuclear inicial de 2.44 a.u. La figura indica una transición desde casi un apantallamiento total para la energía más pequeña hasta casi un no apantallamiento de la explosión coulombiana para el valor de energía más alta.

Los procesos de intercambio de carga han sido incorporados en el programa de simulación escogiendo, cada cierto paso de tiempo, la fracción de carga neutra de equilibrio  $\phi_0$ , la cual es un parámetro de la simulación. Para cada paso de tiempo se han usado los valores de las fuerzas de vecindad y frenado electrónico, y de la repulsión coulombiana correspondiente a cada estado de carga escogido.

La consideración de la explosión coulombiana fuera de la lámina es importante porque la explosión coulombiana que ocurre dentro del material no es completa. Hemos convolucionado las distribuciones teóricas con gaussianas cuyo ancho dependen del coeficiente de rugosidad de la lámina y de la resolución energética del detector experimental (apéndice D). En la figura 3.25 mostramos las distribuciones de energía convolucionada teórica correspondiente a la figura 3.24. Hemos incluido los cálculos para ciertas fracciones de carga neutra,  $\phi_0$ , para determinar cuál ajusta mejor a las distribuciones experimentales.

En la figura 3.26 mostramos los resultados de  $\phi_0$  obtenidos con este méto-

do, en función de la energía incidente del proyectil. Además hemos incluido en la figura una estimación teórica [Arnaud 1989] y unos resultados experimentales [Phillips 1955, Allison 1958, Kreussler y Sizmann 1982] de la fracción de carga neutra para protones saliendo de láminas de aluminio.

Para probar la sensibilidad de nuestros cálculos para las fracciones de carga  $\phi_+$  y  $\phi_0$  hemos representado en la figura 3.27 las distribuciones de energía teóricas de los protones disociados de un haz de moléculas  $\text{H}_2^+$  de 1 MeV, recogidos por un detector después de atravesar una lámina de carbono amorfo de  $2.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  de espesor [Abril *et al.* 2004]. Hemos dibujado las distribuciones de energía para tres valores distintos de la fracción de neutros:  $\phi_0 = 0$ , 0.005, y 0.01. Hemos escogido el valor  $\phi_0 = 0.005$  como el valor que mejor ajusta a los datos experimentales (figura 3.28a). Será este valor el que utilizaremos en los cálculos de las distribuciones energéticas para todos los espesores empleados en los experimentos representadas en la figura 3.28.

## Tránsito de iones $\text{H}_3^+$

Hay muchas diferencias entre el tránsito de iones  $\text{H}_2^+$  y iones  $\text{H}_3^+$ . La primera molécula es plana, mientras que la segunda es lineal, por lo que la molécula de  $\text{H}_3^+$  ofrece la posibilidad de investigar nuevos efectos relacionados con su orientación molecular.

La recombinación para el ion molecular  $\text{H}_3^+$  es poco probable ya que implicaría la captura de dos electrones del medio.

Cierta fracción de iones  $\text{H}_3^+$  se disocia en iones  $\text{H}_2^+$ , pero no todos los iones  $\text{H}_2^+$  son productos de la disociación directa del  $\text{H}_3^+$  ya que una parte de los iones  $\text{H}_2^+$  son resultado de una recombinación de fragmentos  $\text{H}^+$ . La disociación directa del ion  $\text{H}_3^+$  en  $\text{H}_2^+$  puede ser de dos tipos: (1)  $\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}_2^+ + \text{H}^+$  o (2)  $\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}_2^+ + \text{H}^0$ , por lo que hemos analizado los nuevos efectos de vecindad para estas disociaciones. Llegamos a la disociación completa del  $\text{H}_3^+$  a través de la disociación directa en iones  $\text{H}^+$  o a través de la disociación en  $\text{H}_2^+$  si a su vez estos últimos se dividen en  $\text{H}^+$ .

## Geometría inicial

La configuración más estable del  $\text{H}_3^+$  es la de un triángulo equilátero [Gaillard *et al.* 1978b, Gemmell 1980], definida por la distancia de su lado  $R$



(figura 4.1). El valor de la distancia del lado del triángulo depende del estado vibracional en el que se encuentre la molécula.

Para caracterizar la geometría inicial de la molécula en nuestra simulación utilizamos la distribución inicial de  $R$  más apropiada para cada experimento. Si el experimento ha sido realizado usando un método de enfriamiento para las moléculas después de ser aceleradas, utilizaremos una distribución gaussiana para el nivel fundamental ( $\bar{R}_0 \simeq 1.71$  a.u. y  $\sigma_0 \simeq 0.18$  a.u. [Lammich 2001]), mientras que si no se ha usado ningún método de enfriamiento utilizamos una distribución gaussiana para una molécula que llega excitada a la lámina, hallada experimentalmente para cada caso ( $\bar{R} \simeq 1.9$  a.u., y  $\sigma \simeq 0.4$  a.u. [Gaillard *et al.* 1978b, Gemmell 1980]).

Una vez conocida la distribución a utilizar, sorteamos la distancia del lado del triángulo según la distribución escogida. Después construimos el triángulo equilátero formado por los tres protones a partir de la distancia sorteada y obtenemos una orientación aleatoria de este triángulo a través del sorteo de los ángulos de Euler explicado en el apartado 2.1.

## Vida media

La ecuación (3.2) para el caso del ion  $H_3^+$  sólo tiene sentido para el primer término de la derecha, quedando de la forma:

$$Y_3(t) = \exp(-t/\tau_3),$$

donde  $\tau_3$  es la vida media del ion molecular  $H_3^+$ .

También podemos escribir una ecuación para la fracción de iones  $H_2^+$  disociados de los iones  $H_3^+$  en función del tiempo de tránsito  $t$  y de una “vida media de disociación”  $\tau_{3 \rightarrow 2}$ :

$$Y_{3 \rightarrow 2}(t) = \frac{\tau_2 \tau_3}{\tau_{3 \rightarrow 2}(\tau_2 - \tau_3)} [\exp(-t/\tau_2) - \exp(-t/\tau_3)].$$

En la figura 4.3 vemos los resultados experimentales obtenidos por el grupo de Kyoto [Susuki *et al.* 1995] y por el grupo de Lyon [Cue *et al.* 1979a]. Del ajuste de la ecuación (4.1) a sus resultados, los grupos experimentales francés y japonés obtuvieron los valores de  $\tau_3 = 0.118 \pm 0.013$  fs y de  $\tau_3 = 0.13 \pm 0.02$  fs, respectivamente. El valor de la vida media obtenido por Susuki *et al.* [1995] es mucho más reciente y sus datos ajustan mejor a una exponencial, por lo que utilizamos su valor en nuestro programa de

simulación. Notamos que  $\tau_3 \simeq \tau_2/2$ , donde  $\tau_2$  ha sido hallada en el capítulo 3, es más, sabemos por la bibliografía [Cue *et al.* 1979a] que  $\tau_2 \simeq \tau_1$ , donde  $\tau_1$  es la vida media del átomo de hidrógeno  $H^0$  para la misma velocidad y para el mismo material. Esto confirma que la vida media es inversamente proporcional a la probabilidad de disociación y que puede caracterizarse en términos de los electrones de valencia de la molécula.

La vida media  $\tau_{3 \rightarrow 2}$  se obtiene ajustando la ecuación (4.7) a la figura 4.4 de la fracción transmitida de  $H_2^+$ , procedentes de iones  $H_3^+$  incidentes, en función del tiempo de tránsito. Hemos de fijarnos en esta fracción para tiempos de tránsito pequeños porque para tiempos de tránsito suficientemente grandes el proceso de recombinación de iones  $H_2^+$  se hace predominante. El valor de los ajustes anteriores que, implementado en el programa de simulación, da mejor resultado es  $\tau_{3 \rightarrow 2} = 0.72$  fs.

### Frenado electrónico del ion $H_3^+$

El principal objetivo de este apartado es el cálculo teórico del frenado electrónico de la molécula de  $H_3^+$  a primer orden de la aproximación de Born y la comparación con los resultados teóricos y experimentales ya publicados

La densidad de carga del ion  $H_3^+$  es:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\vec{r}, t) = & Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{a}) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{b}) \\ & + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{c}) - 2\rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t). \end{aligned}$$

donde  $Z_1$  es la carga y  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  y  $\vec{c}$  las posiciones de los protones respecto al centro del triángulo equilátero que forman y  $2\rho_{\text{el}}(\vec{r}, t)$  es la densidad de carga de los dos electrones de la molécula. Si el lado del triángulo mide  $R$ , los vértices distan  $R/\sqrt{3}$  del centro.

La densidad electrónica del ion  $H_3^+$  la forman dos electrones ligados en un estado fundamental formando un singlete molecular con spines opuestos. El orbital molecular gaussiano es una combinación lineal de orbitales atómicos gaussianos. Utilizamos orbitales gaussianos ya que estos dieron un mejor resultado en el cálculo variacional para el caso del  $H_2^+$ :

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = N_G [\varphi_G(\vec{r} - \vec{a}) + \varphi_G(\vec{r} - \vec{b}) + \varphi_G(\vec{r} - \vec{c})],$$

donde la función  $\varphi_G(\vec{r})$  es la misma que para el caso del  $H_2^+$ ,  $\alpha$  es el parámetro

orbital y  $N_G$  es el factor de normalización:

$$N_G = \left\{ \frac{1}{3[1 + 2 \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}.$$

Los valores de  $R$  y  $\alpha$  los obtenemos del cálculo variacional, que da  $R_m = 1.695$  a.u. y  $\alpha = 0.475$  a.u.

Para calcular el frenado, ecuación (1.1), y el straggling, ecuación (1.3), electrónico del ion molecular  $H_3^+$  necesitamos calcular la transformada de Fourier de su densidad de carga  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$ :

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\vec{k}) = & Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{a}} + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{b}} + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{c}} - 2.N_G^2 \rho(k) \left[ e^{-i\vec{k}\vec{a}} + e^{-i\vec{k}\vec{b}} + e^{i\vec{k}\vec{c}} \right. \\ & \left. + 2e^{-\alpha R^2/2} (e^{i\vec{k}\vec{a}/2} + e^{i\vec{k}\vec{b}/2} + e^{i\vec{k}\vec{c}/2}) \right]. \end{aligned}$$

Si elevamos  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$  al cuadrado y promediamos para todo ángulo entre  $\vec{k}$  y  $\vec{R}$ , obtenemos:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}} = & 3\mathcal{A}^2(k) \left[ 1 + 2 \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + 3\mathcal{B}^2(k) \left[ 1 + 2 \frac{\sin(kR/2)}{kR/2} \right] \\ & - 6\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \left[ \frac{\sin(\sqrt{3}kR/2)}{\sqrt{3}kR/2} + 2 \frac{\sin(kR/2)}{kR/2} \right], \end{aligned}$$

donde  $\mathcal{A}(k) = Z_1 - \frac{2}{3}\mathcal{C}(k)$ ,  $\mathcal{B}(k) = \frac{4}{3}e^{-\alpha R^2/2}\mathcal{C}(k)$  y  $\mathcal{C}(k) = e^{-k^2/8\alpha}/1 + 2 \exp(-\alpha R^2/2)$ .

En las figuras 4.6 y 4.7 podemos comprobar nuestro resultado con el obtenido por Kaneko [1995] para su ELF [Kaneko 1989] y con el triple del frenado electrónico correspondiente a un solo protón. Adjuntamos el valor experimental obtenido por Susuki *et al.* [1995] para una velocidad  $v = 19.6$  a.u.

## Efectos de vecindad $H_2^+$ - $H^+$

En este apartado estudiamos los efectos de vecindad electrónicos que se producen entre un ion  $H_2^+$  y un ion  $H^+$  o un  $H^0$ , procedentes de la disociación de un ion  $H_3^+$ . Utilizamos las fórmulas de las fuerzas de vecindad electrónica, ecuaciones (1.11) y (1.12) del capítulo 1.

Calculamos la transformada de Fourier de la densidad de carga del ion  $H_2^+$ ,  $\rho_{\text{ext1}}(\vec{k})$ , centrada en uno de los protones y siendo  $\vec{P}$  la distancia internuclear. Sabemos que  $e^{-i\vec{k}\vec{P}}$  sólo implica un desplazamiento  $\vec{P}$  en el espacio real, por lo que podemos agrupar la  $\rho_{\text{ext1}}(\vec{k})$  de la siguiente manera [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$\rho_{\text{ext1}}(\vec{k}) = [Z_1 - N_G^2 \rho(k)] + [Z_1 - N_G^2 \rho(k)] e^{-i\vec{k}\vec{P}} - N_G^2 \rho(k) 2 e^{-\alpha P^2/2} e^{-i\vec{k}\vec{P}/2}.$$

La transformada de Fourier de la densidad de carga del ion  $H^+$  y la del átomo de hidrógeno  $H^0$  son:

$$\rho_{\text{ext2}}(k) = 1$$

y

$$\rho_{\text{ext2}}(k) = \left[ 1 - \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{k}{2}\right)^2\right)^2} \right],$$

respectivamente.

Si descomponemos  $\vec{P}$  en sus coordenadas paralela  $P_{\parallel}$  y perpendicular  $P_{\perp}$ , y calculamos nuevamente las fuerzas de vecindad en sus componentes paralela y perpendicular, nos queda [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$F_{z'H_2^+-H^+}(z', \rho) = F_{Iz'}(z', \rho) + F_{Iz'}(z' - P_{\parallel}, \rho - P_{\perp}) + 2 e^{-\alpha P^2/2} F_{IIz'}(z' - P_{\parallel}/2, \rho - P_{\perp}/2)$$

$$F_{\rho H_2^+-H^+}(z', \rho) = F_{I\rho}(z', \rho) + F_{I\rho}(z' - P_{\parallel}, \rho - P_{\perp}) + 2 e^{-\alpha P^2/2} F_{II\rho}(z' - P_{\parallel}/2, \rho - P_{\perp}/2)$$

donde  $F_{Iz'}$  y  $F_{I\rho}$  están calculadas para una densidad  $\rho_{\text{ext1}}(k) = Z_1 - N_G^2 \rho(k)$ , mientras que  $F_{IIz'}$  y  $F_{II\rho}$  están calculadas para una densidad  $\rho_{\text{ext1}}(k) = -N_G^2 \rho(k) 2 e^{-\alpha P^2/2}$ .

Calculamos las fuerzas de vecindad entre un  $H_2^+$  y un  $H^+$  para dos casos especiales en que  $v = 5$  a.u.,  $\rho = 0$  y  $z'$  varía desde  $-25$  hasta  $10$  a.u. En el primer caso hacemos  $P_{\parallel} = |\vec{P}|$  y  $P_{\perp} = 0$ , es decir el vector internuclear del ion  $H_2^+$  está orientado en la dirección de su velocidad (figura 4.9) y en el segundo caso hacemos  $P_{\parallel} = 0$  y  $P_{\perp} = |\vec{P}|$ , es decir el vector internuclear del ion  $H_2^+$  es perpendicular a la velocidad de éste (figuras 4.10 y 4.11).

En la figura 4.12 vemos la diferencia entre la fuerza de vecindad para  $v = 5$  y  $8$  a.u. en la dirección  $z'$  para el primer caso. Por último, se dibuja la fuerza de vecindad en forma vectorial para el primer caso (figura 4.13). La magnitud de las fuerzas es parecida a la de vecindad entre dos protones (figura 4.14a).

## Distribuciones de energía de iones $\text{H}_2^+$

En el apartado 4.5 analizamos los espectros energéticos experimentales de iones  $\text{H}_2^+$  procedentes de la disociación del ion  $\text{H}_3^+$ . Vemos en ese apartado que el espectro de energías presenta tres picos. Los dos picos más externos son el resultado de la repulsión coulombiana entre los fragmentos de la disociación (1), en cambio el pico central se debe a la falta de esta repulsión en la disociación (2). Gracias a este espectro característico podemos incluso predecir *grosso modo* cuál es la fracción de disociados del tipo (1) y cuál es la fracción del tipo (2).

La diferencia entre las energías de los picos externos es:

$$\Delta E_{\text{picos}} = 4\sqrt{\frac{2E_d E}{3}},$$

donde  $E$  y  $E_d$  son las energías inicial y de disociación por unidad de masa atómica, respectivamente.

En la figura 4.15 representamos el espectro de energía, experimental [Cue *et al.* 1979b] y calculado por nosotros, de iones  $\text{H}_2^+$  que salen de la lámina con ángulo  $0^\circ$  respecto al eje de incidencia de un haz de iones  $\text{H}_2^+$  con una velocidad inicial de  $5.42$  a.u., para un espesor de la lámina de carbono amorfo de  $171.9$  a.u. [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]. La situación del pico central cerca del cero es debido a la disociación (2) y nos indica que  $E_d$  es muy pequeña,  $E_d = 10.13$  eV.

La asimetría en la altura de picos la explicamos a partir de los efectos de vecindad descritos en el apartado 4.4.

En la figura 4.16 representamos los mismos espectros de la figura 4.15 pero para una velocidad del haz incidente  $v = 19.6$  a.u. y para todo ángulo. La fracción entre la disociación (2) frente a la (1) obtenida con nuestro programa de simulación es un  $13\%$  mayor que la obtenida para los espectros anteriores. Obtenemos un valor de  $E_d = 12.02$  eV. Este valor de  $E_d$  y el del experimento anterior son menores que el valor de la energía potencial eléctrica inicial

$E_e = 16.95$  eV, por lo que concluimos que los fragmentos cambian de estado, del estado disociativo (1) al (2) y viceversa, durante su recorrido en la lámina.

## Distribuciones de energía y ángulo de iones $H^+$

En el apartado 4.6 estudiamos las distribuciones de energía y ángulo de los protones que emergen de láminas delgadas después de que iones  $H_3^+$  se disocien en su interior. Suponemos para el cálculo teórico que el ion  $H_3^+$  se disocia en tres protones desde un principio. A las velocidades de los experimentos la fracción de neutros es despreciable, por lo que hemos prescindido de ella.

En la figura 4.17 presentamos los espectros de energía a ángulo  $0^\circ$  para moléculas  $H_3^+$  que inciden con una velocidad  $v = 5.17$  a.u. sobre láminas de carbono amorfo de espesor 105 y 380 Å (figuras 4.17a y 4.17b, respectivamente). La aceptación del detector es de  $0.12^\circ$  y su resolución energética de 5 keV (ancho total a mitad de altura, FWHM). Los símbolos corresponden a resultados experimentales [Gemmell *et al.* 1975] y el histograma es nuestra simulación. Los espectros muestran dos picos, como se espera de una repulsión coulombiana de tres protones que forman un triángulo equilátero [Gaillard *et al.* 1978b].

La figura 4.18 muestra la distribución de energía correspondiente al experimento de Argonne [Gaillard *et al.* 1978b], y teórica a ángulo cero para moléculas de  $H_3^+$  que inciden con una velocidad de  $v = 5.29$  a.u. en una lámina de carbono amorfo de 140 Å de espesor. La aceptación del detector es de  $0.013^\circ$  y su resolución energética es de 0.42 keV. Vemos un pequeño pico central en el espectro experimental, como no hemos incluido la fracción de neutros en nuestro programa de simulación y no obtenemos este pico central suponemos que es debido a la fracción de neutros que anula la repulsión coulombiana.

Las figuras 4.19 y 4.20 representan las distribuciones de ángulo experimentales [Gaillard *et al.* 1978b] y teóricas de protones que llegan al detector con una energía de 700 keV y para toda energía, respectivamente.

Por último analizamos un espectro de energías de la disociación de la molécula de  $H_3^+$  obtenido por Miao *et al.* [1986]. El experimento se realizó para una velocidad del haz incidente de  $v = 5.24$  a.u. y para una lámina de carbono de 150 Å de espesor. La aceptación del detector que suponemos en el cálculo teórico es  $0.013^\circ$ , ya que es la que mejor ajusta a los datos experimentales. La resolución energética del detector experimental es 0.12

keV.

## Geometría a la salida de la lámina

Los experimentos que analizamos en este apartado fueron realizados en un anillo de almacenamiento, donde la molécula de  $\text{H}_3^+$  se desexcita hasta quedar en el estado fundamental [Wester 1999], por lo que utilizamos la distribución gaussiana de distancias internucleares iniciales para el estado fundamental.

El estudio que presentamos en este apartado es meramente cualitativo, ya que los cálculos son realizados para láminas de carbono amorfo y aluminio, mientras que los resultados experimentales han sido realizados para una lámina de formvar.

En la figura 4.22 se muestran las distribuciones de las distancias relativas entre los protones a la llegada al detector para unas orientaciones de la molécula de  $\text{H}_3^+$  características, donde llamamos 1 al protón más avanzado, 2 al intermedio y 3 al más retrasado en la orientación inicial. En la figura 4.23 representamos las distribuciones de distancias relativas para una orientación aleatoria inicial para cuatro casos con diferentes velocidades incidentes y espesores de la lámina de carbono amorfo. La figura 4.24 muestra los mismos cálculos pero para una lámina de aluminio.

En la figura 4.26a obtenemos la distribución teórica de probabilidades del ángulo  $\theta$  formado por la normal al plano de los protones y la dirección del haz con el que llegan al detector después de atravesar una lámina de carbono amorfo, mientras que la figura 4.26b muestra la misma distribución experimental para una lámina de formvar.

Si normalizamos las distancias relativas anteriores interprotónicas entre el tiempo que tardan en llegar los protones al detector y calculamos las distancias propias de los modos de vibración de la molécula, el resultado tiene unidades de velocidad. La figura 4.27 representa un mapa de tonos experimental de las historias recogidas en función de estas velocidades y del coseno del ángulo anteriormente estudiado, correspondiente a los fragmentos disociados de iones  $\text{H}_3^+$  incidentes con una velocidad  $v = 4.38$  a.u. sobre una lámina de formvar de  $30 \text{ \AA}$  de espesor [Kreckel 2000].

La figura 4.28 representa las mismas figuras obtenidas con nuestro programa de simulación para las mismas condiciones del experimento, pero con una lámina de carbono amorfo.

Tanto la simulación de las distribuciones de las distancias interprotónicas como el estudio cualitativo del ángulo normal del plano formado por los

tres protones disociados y de las velocidades de los modos de vibración, nos indican la importancia de tener en cuenta los efectos de vecindad mientras los fragmentos moleculares viajan por el interior de la lámina.

## Tránsito de iones $H_n^+$

En el capítulo 5 se estudia los fragmentos disociados de los iones  $H_n^+$  (para  $n = 5, 7$  y  $9$ ) que compararemos con los de los iones más pequeños anteriormente estudiados ( $n = 1, 2$  y  $3$ ). En concreto analizamos el frenado, las distribuciones de ángulo y de distancias internucleares de los fragmentos disociados después de atravesar láminas de carbono amorfo.

## Geometría inicial

Los resultados experimentales dependen de la estructura inicial del agregado de hidrógeno. Los agregados de iones  $H_n^+$  están formados por un ion  $H_3^+$  con forma de triángulo equilátero que sirve de agente de nucleación para iones  $H_2^+$ .

La geometría inicial de los iones  $H_5^+$ ,  $H_7^+$  y  $H_9^+$  se puede ver en la figura 5.1. Los valores para las diferentes distancias y ángulos que definen la estructura de estos iones han sido tomados para el estado de mínima energía [Farizon *et al.* 1991] y que aparecen en la tabla 5.1. La forma de triángulo equilátero del ion  $H_3^+$  central la rompe el número asimétrico de unidades  $H_2^+$  que contienen los agregados  $H_5^+$  y  $H_7^+$ .

## Modelo para la pérdida y captura electrónica

Cuando los protones disociados están todavía muy juntos se produce un incremento en la captura electrónica, mientras que cuando están más separados se vuelve a una captura electrónica característica de iones aislados [de Castro Faria *et al.* 1986b]. En el apartado 5.2 ampliamos un modelo desarrollado por Farizon *et al.* [1997] para calcular el incremento de la captura electrónica, o el aumento de fracción de  $H^0$  en los fragmentos disociados de agregados de hidrógeno.

El inverso de la fracción de neutros  $\phi_0^i$  de un protón rodeado de  $n - 1$



protones vecinos es:

$$\frac{1}{\phi_0^i} = \frac{I_{\text{sol}}}{I_{\text{sol}}^i} \left( \frac{1}{\phi_0} - 1 \right) + 1.$$

donde  $I_{\text{sol}}$  es la energía de ionización de un átomo de hidrógeno en el sólido, obtenida de la bibliografía [Rogers *et al.* 1970],  $I_{\text{sol}}^i$  es la energía de ionización de un átomo de hidrógeno rodeado de  $n - 1$  vecinos, obtenida de la ecuación (5.4), y  $\phi_0$  es la fracción de neutros para protones aislados obtenida de los resultados experimentales de Farizon *et al.* [1997].

En la figura 5.2 representamos mediante símbolos rellenos la fracción de neutros experimental [Farizon *et al.* 1997] procedentes de la disociación de agregados de hidrógeno  $\text{H}_n^+$  que inciden con unas velocidades de 1.1, 1.27, 1.55, 1.79 y 2.19 a.u. en láminas de carbono amorfo de distinto espesor (240.6 y 389.5 a.u.). Los resultados obtenidos con nuestro programa de simulación utilizando la ecuación anterior aparecen representados por símbolos huecos.

La fracción de neutros aumenta con el número de hidrógenos del agregado para una misma velocidad y para un mismo espesor. Este efecto queda reflejado en nuestro modelo al aumentar el número de sumandos en la ecuación (5.4) según el número de hidrógenos del agregado.

Para una misma velocidad, el aumento en la fracción de neutros con el número de hidrógenos es diferente según el espesor de la lámina, lo que presupone una dependencia directa con la distancia internuclear que también está incluida en nuestro modelo. Por último, cabe decir que la fracción de neutros disminuye globalmente con la velocidad incidente del agregado, hecho que está integrado al tomar *a priori* el valor de la fracción de neutros para el caso del protón aislado,  $\phi_0$ .

## Distribuciones de $\text{H}^+$ disociados

En el apartado 5.3 suponemos en nuestros cálculos que los agregados de hidrógeno se disocian totalmente en sus protones al entrar en la lámina. Se presentan las distribuciones de ángulos experimental [Farizon *et al.* 1992] y teórica de los átomos de hidrógeno disociados de iones  $\text{H}_7^+$  que inciden con una velocidad de 1.79 a.u. sobre una lámina de carbono amorfo de 389.5 a.u. de espesor (figura 5.3a) y disociados de iones  $\text{H}_9^+$  que inciden con una velocidad de 1.55 a.u. sobre una lámina de carbono amorfo de 229.1 a.u. de espesor.

El ancho de las distribuciones de ángulo está relacionado directamente

con la repulsión coulombiana en el interior de la lámina. Si representamos el ancho a mitad de altura (FWHM) experimental en función del número de hidrógenos del agregado, para distintas velocidades y para un espesor de la lámina de carbono de 229.1 a.u., obtenemos la figura 5.4. A partir nuestro cálculo vemos que una fracción de neutros en el interior  $\phi_{0\text{int}}$  frena la repulsión coulombiana (ver figura 5.4,  $v = 1.55$  a.u.,  $\phi_{0\text{int}} = 0.4$ ). Por este motivo hemos realizado los cálculos donde la probabilidad de captura electrónica se da en la superficie de salida de la lámina,  $\phi_{0\text{sup}}$ .

En la figura 5.5b podemos ver los resultados experimentales de Eckardt *et al.* [1978] y de Ray *et al.* [1992] para el frenado electrónico relativo del agregado en función del número de sus hidrógenos para una velocidad de 1.55 a.u. y una lámina de carbono amorfo de espesor 343.7 a.u. Añadimos a esta figura nuestros resultados teóricos para una fracción de neutros en el interior del material,  $\phi_{0\text{int}}$ , y para una fracción de neutros sólo en la superficie,  $\phi_{0\text{sup}}$ . Vemos que el cálculo que mejor ajusta es para el caso cuando utilizamos una fracción de neutros en el interior.

Finalmente representamos las distribuciones de distancias relativas entre los fragmentos a la salida de lámina de carbono amorfo de 229.1 a.u. de espesor para una velocidad inicial de 1.55 a.u. (figura 5.6). Nuestros cálculos se acercan más al hallado por Farizon *et al.* [1992] cuando incluimos en nuestro programa una fracción de neutros en la superficie, pero difieren todavía bastante.

Podría ser que la distribución de distancias iniciales no son las mismas en los dos casos. Si para el agregado más sencillo,  $\text{H}_2^+$ , utilizamos una distribución gaussiana con una cierto ancho, definido por la raíz cuadrada de su varianza,  $\sigma$ , vamos a comprobar cómo afecta el cambio de esta varianza a la distribución de distancia finales. La figura 5.7 muestra como varían nuestros cálculos con dos distribuciones gaussianas de distancias interprotónicas iniciales con distinta  $\sigma$ .

En conclusión, en ese capítulo nos hemos encontrado con dos resultados contrapuestos. El análisis de las distribuciones de ángulos y de distancias internucleares nos ha llevado a pensar que no hay una fracción de neutros en el interior, mientras que el análisis de las distribuciones de energías nos hace pensar lo contrario. Esto podría ser debido a que cuando calculamos el frenado con nuestro programa de simulación tratamos a los fragmentos con una cierta densidad de carga, mientras que cuando calculamos la repulsión coulombiana, principal causante de la desviación de la trayectoria inicial del fragmento y del aumento de las distancias internucleares, tratamos a los

fragmentos como puntuales.

# Conclusiones

Las principales conclusiones de este trabajo son las siguientes:

- Hemos creado un programa de simulación que permite analizar con gran detalle experimentos de interacción de proyectiles moleculares con láminas delgadas.
- A partir del formalismo dieléctrico y de una función de pérdida energética que describe adecuadamente el poder de frenado del medio electrónico del material, hemos visto que el frenado electrónico del átomo de hidrógeno  $H^0$  es menor que el frenado electrónico de un protón, y que el frenado electrónico de los iones moleculares  $H_2^+$  y  $H_3^+$  es menor que el doble y el triple del frenado electrónico de un protón, respectivamente.
- Además, hemos hallado los efectos de vecindad electrónicos en el sistema  $H_2^+-H^+$ , los cuales son parecidos a los del  $H^+-H^+$ . Los efectos de vecindad tienden a alinear en la dirección del haz los fragmentos disociados de los iones moleculares. Este efecto se pone de manifiesto en la asimetría de altura de los picos coulombianos de los espectros de energía de los protones disociados de la molécula de  $H_2^+$  o de  $H_3^+$ . También se ve este efecto en las distribuciones de distancias relativas entre los protones procedentes de la disociación total del ion  $H_3^+$ , ya que el valor medio de la distribución de la distancia relativa entre los dos protones más retrasados es menor que el valor medio de las respectivas distribuciones de los protones más adelantados. Por último, y en el hecho de que el valor más probable del ángulo entre la normal del plano formado por los tres protones y la dirección del haz es  $90^\circ$ , es también una manifestación de la tendencia al alineamiento de los proyectiles, consecuencia de los efectos de vecindad electrónicos.

- Hemos establecido un modelo para incorporar los procesos de pérdida y captura electrónica de los fragmentos atómicos procedentes de agregados de hidrógeno. Hemos comprobado que los procesos de pérdida y captura electrónica de un proyectil atómico están influenciados por la presencia de fragmentos vecinos procedentes de una misma disociación y que dependen de la distancia  $R_{ij}$  entre ellos y de la velocidad de haz.
- Hemos simulado el tránsito de iones moleculares  $\text{H}_2^+$ , sin disociar y disociados, a través de láminas delgadas. Al implementar en el programa de simulación el proceso de recombinación del ion  $\text{H}_2^+$  hemos comprobado que depende del hecho de que dos protones capturen un electrón en la superficie de salida de la lámina y que el sistema formado por los dos protones y el electrón tengan una energía interna menor que el máximo relativo del potencial efectivo para el nivel electrónico fundamental del ion  $\text{H}_2^+$  y que la distancia interprotónica esté comprendida entre los puntos clásicos de retroceso. Hemos puesto de manifiesto que la pérdida de energía de un ion  $\text{H}_2^+$  original transmitido es la propia de un ion molecular mientras que la pérdida de energía de un ion  $\text{H}_2^+$  recombinado es la propia de dos protones que viajan juntos por el material.
- También hemos simulado el tránsito de iones moleculares  $\text{H}_3^+$ , sin disociar y disociados, a través de láminas delgadas. Hemos corroborado que la geometría inicial del ion  $\text{H}_3^+$  es un triángulo equilátero, ya que es la única geometría que puede dar dos picos tanto en los espectros de energía como en los de ángulo. La distancia inicial del lado de este triángulo equilátero depende de las condiciones del experimento y afecta sensiblemente los resultados finales. Hemos hallado en los espectros energéticos de los iones  $\text{H}_2^+$  disociados de iones  $\text{H}_3^+$  una asimetría en la altura de los picos coulombianos contraria a la encontrada en los fragmentos atómicos disociados; esta asimetría se debe únicamente a los efectos de vecindad característicos del ion  $\text{H}_2^+$ . También hemos visto que a partir de los diferentes picos de los espectros energéticos podemos ver *grosso modo* cuáles son los tipos de disociación del ion  $\text{H}_3^+$  en iones  $\text{H}_2^+$ .
- Por último hemos estudiado el tránsito de iones moleculares de hidrógeno más grandes,  $\text{H}_n^+$  ( $n = 5, 7$  y  $9$ ). Aquí nos hemos encontrado con dos resultados contrapuestos. El análisis de las distribuciones de ángulos y de distancias internucleares nos ha llevado a pensar que no hay una

---

cierta fracción de fragmentos neutros cuando éstos viajan en el interior de la lámina, mientras que el análisis de las distribuciones de energías nos hace pensar lo contrario.



# Publicaciones

Los distintos trabajos de investigación realizados durante esta Tesis Doctoral ha dado lugar a los siguientes artículos publicados en revistas de carácter internacional con arbitraje (ver apéndice E):

- Denton C. D., I. Abril, M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, G. H. Lantschner, J. C. Eckardt y N. R. Arista 2002, Effect of the neutral charge fraction in the coulomb explosion of  $H_2^+$  ions through aluminum foils, Nucl. Instr. Meth. B **193**, 198.
- Garcia-Molina R. y M. D. Barriga-Carrasco 2003, Simulation of the molecular recombination yield for swift  $H_2^+$  ions through thin carbon foils, Phys. Rev. A **68**, 054901.
- Barriga-Carrasco M. D. y R. Garcia-Molina 2003, Vicinage forces between molecular and atomic fragments dissociated from small hydrogen clusters and their effects on energy distributions, Phys. Rev. A **68**, 062902.
- Barriga-Carrasco M. D. y R. Garcia-Molina 2004, Simulations of the energy spectra of original versus recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin foils, Phys. Rev. A **70**, 032901.
- Abril I., Denton C. D., M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, K. Kimura y N. R. Arista 2004, Influence of electron capture and loss in the energy distribution of protons dissociated from fast  $H_2^+$  molecules in thin carbon foils, Phys. Stat. Sol. (c) **1**, S21-S25.





# Summary, conclusions and publications

In this work we have developed a theoretical treatment in combination with a simulation program to analyse a great quantity of experiments carried out on the penetration of hydrogen cluster ions ( $H_n^+$ ,  $n = 2, 3, 5, 7, 9$ ) through thin foils. The interest in the study of the transport of the  $H_n^+$  hydrogen clusters is because they are the simplest molecular projectiles, but at the same time all the basic interactions of the molecular clusters are given in them. In this work we have focused in the analysis of the interactions between the molecular projectiles and the stopping medium, more than in the analysis of the target.

To account for the interactions that the  $H_2^+$  projectiles suffer, our group developed a simulation program [Denton *et al.* 1996, 1997, Denton 1997].

In this work we have implemented in the program of simulation new interactions in order to consider more molecular hydrogen projectiles and with new processes that describe better these interactions. We have put special emphasis in the transmission and the recombination of the original molecular projectiles, and in the processes of electronic loss and capture that experience the dissociated fragments of these molecular ions. The fact that the molecular projectiles behave in a different way when they travel without being dissociated compared to the case when they travel dissociated, and that the electronic loss and capture changes the charge state of the dissociated fragments, require to consider new types of events between the projectiles and the solid target, and between the fragments from the same dissociation. Throughout this work we have used atomic units ( $m_e = e = \hbar = 1$ ,  $\epsilon_0 = 1/4\pi$ , appendix A) unless otherwise stated.

## Theoretical background

The interactions that a molecular projectile suffers when traveling through a foil have been discussed in chapter 1. We divide these interactions in two groups: the characteristic interactions of atomic projectiles and the additional interactions that molecular projectiles experience. We study each fragment of the dissociation as an atomic projectile and later we add the molecular interactions with the other fragments of the same dissociation.

### Interactions of the atomic projectile

In the characteristic interactions of the atomic projectiles two main effects can be distinguished: the interaction with the electronic medium of the material and the interaction with the nuclei of the material. The interactions of the projectile with the electrons of the material have been described by the dielectric formalism, which describes the response of the electronic medium to external perturbation through the dielectric function  $\epsilon(k, \omega)$ . We use in this work a model based on a linear combination of the energy loss function obtained from the dielectric function proposed by Mermin [1970] for the external electron excitations and an hydrogenlike approach of the generalized oscillator strength for internal electrons [Moreno-Marín *et al.* 2002], which describes properly the optical properties and the energy loss spectra of real materials.

The stopping power of the material for a charge density  $\rho(\vec{r}, t)$  traveling with a constant velocity  $\vec{v}$  is:

$$S_p = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho^2(k),$$

where  $k$  and  $\omega$  are the module of the momentum  $\vec{k}$  and the energy transferred to the electronic excitations of the target, and  $\rho(k)$  is the Fourier transform of the projectile charge density.

The electronic stopping is a statistical process (figure 1.1), so it is convenient to define the “straggling”, which is the variance of the energy loss for unit path length:

$$\Omega^2 = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho^2(k).$$

Another electronic effect is the electronic loss and capture processes. When the projectile impinges in the material, it loses and captures electrons during all its travel through the material, modifying its charge state. The charge states of the fragments from the complete dissociation the hydrogen clusters are  $H^+$ ,  $H^0$  and  $H^-$ . For the range of energy that we study in this work one can reject the possibility of the charge state  $H^-$  due to the difficulty that the capture of a second electron supposes [de Castro Faria *et al.* 1986a]. If the foil is sufficiently thick a equilibrium is establish between the processes of electronic loss and capture, with fractions  $\phi_+$  and  $\phi_0$  for the charge states  $H^+$  and  $H^0$ , respectively.

The nuclear interactions are due to the elastic collisions between the projectile and the nuclei of the atoms that form the stopping material, and they cause a change of the projectile direction and a small energy loss, which is much smaller that the energy loss due to the electronic stopping in the range of energy we study.

The classical theory of the dispersion has been used to treat this effect. Concerning nuclear interactions, we treat the projectiles like nuclei. So the nuclei of the projectiles and the nuclei of the material have a collision cross section.

In the center of mass frame, the angle  $\theta$  with which a projectile with an energy  $E$  a mass  $M$  is scattered from a nucleus of the material of mass  $M_n$ , is given by [Goldstein 1977]:

$$\theta = \pi - 2s \int_{R_{\min}}^{\infty} \frac{dr}{r^2 \sqrt{1 - V(r)/E_r - s^2/r^2}},$$

where  $E_r = 4MM_nE/(M + M_n)^2$  is the maximum transferable energy,  $s$  is the impact parameter,  $r$  is the distance between the projectile and the dispersion center and  $R_{\min}$  is the distance of minimum approach that is obtained making zero the radicand of the denominator in the previous equation. The interaction energy  $V(r)$  comes from a Thomas-Fermi Coulomb screened potential [Nastasi *et al.* 1996]:

$$V(r) = \frac{ZZ_n}{r} \Phi\left(\frac{r}{a}\right),$$

with the universal screening distance [Ziegler *et al.* 1985]:

$$a = 0.8854/(Z^{0.23} + Z_n^{0.23}).$$

A scheme of this interaction can be seen in figure 1.2.

The energy  $T$  transferred to the nucleus, and therefore lost by the projectile, is related to the scattering angle  $\theta$  by [Goldstein 1977]:

$$T = \frac{4MM_nE}{(M + M_n)^2} \sin^2(\theta/2),$$

so the greater is the scattering angle the greater is the energy loss.

## Interactions of the molecular projectile

When the molecular projectiles are dissociated in their components, besides they experience the same interactions than the atomic projectiles, they suffer more interactions due to the vicinity of the other dissociated fragments from the same molecule.

The interactions with neighbours characteristic of the molecular projectiles are two: the vicinage effects caused by a fragment on another through the electronic medium, and the Coulomb force between the fragments.

The vicinage effect through the electronic medium of the material is analysed using the dielectric formalism. The Coulomb force is analysed separately. In the case of electronic interactions we have treated the projectiles according to their charge density, but for the “Coulomb explosion” we have treated the projectiles like point charges.

The vicinage forces have cylindrical symmetry with respect to the velocity of the ion that produces the force. The vicinage forces induced by an ion (charge density  $\rho_{\text{ext1}}$  moving with velocity  $\vec{v}$ ) on another ion (charge density  $\rho_{\text{ext2}}$  and located at distances  $z'$  and  $\rho$  parallel and perpendicular to the velocity  $\vec{v}$ , respectively, figure 1.3), are [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$\begin{aligned} F_{z'}(z', \rho) = & \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_0(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ & \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \sin(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ & \left. + \cos(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\}, \end{aligned}$$

$$F_\rho(z', \rho) = \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega J_1(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \\ \times \rho_{\text{ext}1}(k) \rho_{\text{ext}2}(k) \left\{ \cos(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ \left. - \sin(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\},$$

where  $J_0(x)$  and  $J_1(x)$  are Bessel functions of the first kind and order 0 and 1, respectively [Abramowitz and Stegun 1972].

The vicinage forces defined by the previous equations are shown in figure 1.4 as a function of the distances  $z'$  and  $\rho$  for three different velocities,  $v = 0.7$ , 4.47 and 23.66 a.u. in an amorphous carbon foil.

Another electronic vicinage effect is the influence of a fragment on the charge state of its neighbours. The charge state of the molecular fragments differs from the case when the ions travel alone [Maor *et al.* 1985, de Castro Faria *et al.* 1986b, Heredia-Avalos *et al.* 2001]. When the fragments (usually charged positive) are still very close, an enhancement in the electronic capture takes place, while when they are more separate the electronic capture returns to typical values for isolated ions. The Coulomb forces between the dissociated fragments are repulsive or zero, according to the charge states we consider. The repulsion increases the distance between fragments and it causes their deviation from their initial trajectory.

## Simulation methods

In chapter 2 we have explained the methods we use to implement in our simulation program the interactions analysed in chapter 1.

In most experiments the molecules arrive to the foil with a random orientation, so we have incorporated to our simulation program a method to take a random initial orientation of the molecule. The method we use is a random draw of the Euler angles that characterize the molecular orientation.

Molecular dynamics is a numerical simulation method that allows to follow the evolution of a system of particles, using Newton equations. If we know the positions and the velocities in a time  $t$ , and we know what forces act on the system, we will obtain the positions and the velocities in an immediately later instant,  $t + \Delta t$ .

For example, the value of the electronic stopping force is obtained starting from the draw of a Gaussian distribution whose mean value is the stopping power  $\bar{S}_p$ , equation (1.1), and with a variance  $\Omega^2/\Delta z$ , where  $\Omega^2$  is the electronic straggling, equation (1.3), and  $\Delta z = v \Delta t$ , being  $v$  the velocity of the projectile in the time interval  $\Delta t$ .

$$\mathcal{P}(S_p) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \sqrt{\Omega^2/\Delta z}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \frac{(S_p - \bar{S}_p)^2}{\Omega^2/\Delta z} \right].$$

This value will be used with the values of the vicinage and Coulomb forces in the algorithm of molecular dynamics. The vicinage forces, like the values of the stopping and the straggling, are calculated *a priori*, since the simulation program would take a lot of time in calculating at each time the integrals specified by the equations (1.11) and (1.12).

The method used for the nuclear scattering is based on the binary collision model described by Moller *et al.* [1975] and on the Monte Carlo simulation method developed by Zajfman *et al.* [1990].

In another section we present an analytical method to consider the pure Coulomb explosion, that is to say without any other interaction, between two fragments. This method is useful to find the module, through the energy conservation, and the direction, through the conservation of the Runge-Lenz vector (defined by Englefield [1972]), of the velocities of these two fragments when the internuclear vector between both becomes infinite. We also analyse the value of the internuclear distance for very large times.

## **H<sub>2</sub><sup>+</sup> transport**

The H<sub>2</sub><sup>+</sup> molecule is formed by two protons separated by a distance  $R$  and an electron. The distance between these two protons depends on the vibrational molecule level, which will be related with the production and acceleration processes of the H<sub>2</sub><sup>+</sup> molecule. Its positive charge is due to an electron extraction (ionization) from the H<sub>2</sub> molecule in order to be accelerated in an electric field .

### **Initial geometry**

Bars in figure 3.1 represents the probability of the different internuclear mean distances for the twenty vibrational bound states of the H<sub>2</sub><sup>+</sup> molecule,

calculated using the Franck-Condon principle (appendix C).

We have characterized the geometry of the  $\text{H}_2^+$  molecule incident on a target from a draw of the internuclear distance according to its probability distribution obtained from the Franck-Condon principle, and a draw of the initial orientation according to the method of the Euler angles.

## Lifetime

Two processes have been distinguished that contribute to the detection of  $\text{H}_2^+$  molecules at the exit of the foil: the transmission of the original molecule and the recombination of the dissociated protons of the original molecule when capturing an electron at the exit of the foil. According to Cue *et al.* [1980a, 1980b] the fraction  $Y$  of  $\text{H}_2^+$  ions transmitted only depends on the molecular dwell time  $t$  through the foil, according to the relationship:

$$Y(t) = (1 - B) \exp(-t/\tau) + B \exp(-bt),$$

where  $B$ ,  $b$  and  $\tau$  are constants for a certain velocity and for a given material.

The first term at the right side of the previous equation shows the fraction of original  $\text{H}_2^+$  ions and the second term correspond to the fraction of  $\text{H}_2^+$  ions formed by recombination. As  $B \ll 1$  for high energies,  $\tau$  is interpreted as the lifetime of the molecule in the solid.

Figure 3.5 shows the experimental fractions obtained by the group of Lyon [Cue *et al.* 1980a, 1980b] and the group of Kyoto [Susuki *et al.* 1994]. We do not see why the value of the lifetime found experimentally is higher for higher velocities, so we try to solve this dilemma analysing the transmission behaviour of the hydrogen atom.

We compare in figure 3.6 the lifetime of the hydrogen atom calculated with the formulas used by Château-Thierry *et al.* [1976] from Brandt-Sizmann (BS) theory with the values obtained previously for the lifetime of the  $\text{H}_2^+$  ion.

On the other hand, we realized that the lifetime of the  $\text{H}_2^+$  ion can be related with the time of the joint BS probability that a system formed by two protons and an electron loses the electron. The result is also shown in the graph represented in figure 3.6. This new calculation approaches better the experimental  $\text{H}_2^+$  lifetime, mainly for the value 0.23 fs obtained by Susuki *et al.* [1994]. It is for this last reason and for the fact that the results by Susuki are more recent that we choose the value obtained by this group as the most appropriate value for the  $\text{H}_2^+$  lifetime.



## Electronic stopping of the $\text{H}_2^+$ ion

The aim of section 3.3 is the theoretical calculation of the electronic stopping of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion to first order of Born's approximation and the comparison with the theoretical and experimental results already published.

The charge density of the  $\text{H}_2^+$  ion is [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]:

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{r}, t) = Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{R}/2) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t + \vec{R}/2) - \rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t).$$

where  $Z_1$  is the charge of the proton,  $\vec{R}$  the distance between protons and  $\vec{v}$  the velocity of the  $\text{H}_2^+$  ion. We use a Gaussian model [Kaneko 1995] for the wave functions of the electronic molecular density  $\rho_{\text{el}}$ , since the variational method give us values for the minimum of potential  $U(R_{\text{m}})$  and for its corresponding internuclear distance,  $R_{\text{m}} = 2.05$  a.u., closer to the exact values [Levine 1977]:

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = N_{\text{G}} [\varphi_{\text{G}}(\vec{r} - \vec{R}/2) + \varphi_{\text{G}}(\vec{r} + \vec{R}/2)],$$

where  $\varphi_{\text{G}}(\vec{r})$  is the normalized Gaussian wave function:

$$\varphi_{\text{G}}(\vec{r}) = \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/4} \exp(-\alpha r^2).$$

$\alpha = 0.43$  a.u. is the orbital parameter and  $N_{\text{G}}$  is the normalization factor for this molecular orbital:

$$N_{\text{G}} = \left\{ \frac{1}{2 [1 + \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}.$$

To calculate the stopping power, equation (1.1), and the straggling, equation (1.3), we need the Fourier transform of the charge density of the  $\text{H}_2^+$  ion:

$$\rho_{\text{ext}}(\vec{k}) = 2Z_1 \cos(\vec{k}\vec{R}/2) - \frac{e^{-k^2/8\alpha} [\cos(\vec{k}\vec{R}/2) + e^{-\alpha R^2/2}]}{[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]}.$$

If we take square of  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$  and we average it for all angles between  $\vec{k}$  and

$\vec{R}$ , we obtain [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004]:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}} = & \mathcal{A}^2(k) \frac{1}{2} \left[ 1 + \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + \mathcal{B}^2(k) \\ & - 2\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \frac{\sin(kR/2)}{kR/2}. \end{aligned}$$

where  $\mathcal{A}(k) = 2Z_1 - \mathcal{C}(k)$ ,  $\mathcal{B}(k) = e^{-\alpha R^2/2} \mathcal{C}(k)$  and  $\mathcal{C}(k) = e^{-k^2/8\alpha} / [1 + \exp(-\alpha R^2/2)]$ .

In figures 3.9a and 3.9b we can compare the electronic stopping and straggling, respectively, obtained for the  $\text{H}_2^+$  molecule with twice the proton's one. The stopping and the straggling of the  $\text{H}_2^+$  molecule have been calculated with our ELF using a Gaussian molecular orbital. Experimental results are added, which will be analysed in later sections.

## $\text{H}_2^+$ recombination

We saw that the second term of the equation (3.2),  $B \exp(-bt)$ , corresponds to the recombination of the molecule from its dissociated fragments. This term does not tend to 1 for  $t \rightarrow 0$ , it decays more smoothly than the first term, that is to say  $b < 1/\tau$ , and it depends strongly on the velocity of the molecular ion. The difference between these two regimes can be observed in figure 3.10 for large dwell times.

The recombination can only take place if two dissociated protons of the original molecule capture a electron at the exit of the foil. But not only that, it is also needed that the two protons and the captured electron form a bound state to form the  $\text{H}_2^+$  molecule. We have considered that the recombination only happens for the ground electronic state  $1s\sigma_g$  of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion.

In order to have a bound system, the internal energy of the system formed by the two protons and the electron must be smaller than the maximum of the effective potential for dissociation (figure 3.11), *i.e.* [Garcia-Molina y Barriga-Carrasco 2003]:

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2}\mu v^2 + U_{\text{eff}}(R, v) = \frac{1}{2}\mu v^2 + U(R) + \frac{L^2}{2\mu R^2},$$

$$E_{\text{int}} < U_{\text{eff máx}}(R, v) \Rightarrow \text{recombination},$$

$$E_{\text{int}} > U_{\text{eff máx}}(R, v) \Rightarrow \text{no recombination},$$

where  $\mu$ ,  $v$  and  $L$  are the reduced mass, the module of the relative velocity and the module of the relative angular momentum,  $\vec{L} = \mu \vec{R} \times \vec{v}$ , respectively. Also the value of the internuclear distance  $R$  must be comprised between the values of the classic turning points of the effective potential well.

If we compare the results obtained by our program of simulation with the experimental results we see that the agreement is rather acceptable (figure 3.12). The change in the slope of the logarithmic graph for large dwell times indicates the process of recombination, for small dwell times, the recombination is masked by the original transmission.

If we normalize the recombination to twice the neutral fraction at that velocity, then all the slopes merge into one (figure 3.13). A small difference between the theoretical and experimental curves is seen, which can be due to the fact that the proton neutral fraction we use in the simulation program is not exactly the experimental one.

## $\text{H}_2^+$ energy distributions

We can also distinguish between transmitted and recombined molecules according to the energy lost ( $E_L$ ) by these molecules. If the energy lost by the molecule is similar to the one calculated by us in section 3.3 ( $E_{L \text{ Teo}}$ ) it is an original molecule ( $\text{H}_{2\text{Ori}}^+$ ), if the energy lost is similar to the energy lost by two protons traveling together, *i.e.* twice the energy lost by one proton, it is a recombined molecule ( $\text{H}_{2\text{Re}}^+$ ) [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004].

$$E_L(\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}_{2\text{Ori}}^+) \simeq E_{L \text{ Teo}}(\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}_{2\text{Ori}}^+),$$

$$E_L(\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H}_{2\text{Re}}^+) \simeq 2 \times E_L(\text{H}^+ \rightarrow \text{H}^+).$$

Figures 3.14a, 3.14b and 3.15 show the experimental and calculated (with our simulation program) energy distributions of the transmitted  $\text{H}_2^+$  ions, for some initial velocities and some thicknesses of the amorphous carbon foil:  $v = 0.7$  a.u. and  $D = 28.36$  a.u.,  $v = 0.7$  a.u. and  $D = 56.71$  a.u. and  $v = 1$  a.u. and  $D = 48.20$  a.u., respectively. The stopping power and the straggling derived from the experimental energy distribution tell us that the transmitted  $\text{H}_2^+$  ions are mostly recombined (figures 3.9a and 3.9b).

The distributions of the internuclear distance,  $R$ , and of the module of the angular momentum,  $L$ , just when the program detects the formation of a recombined  $\text{H}_2^+$  ion can be seen in figure 3.18 for a velocity  $v = 0.7$  a.u. and for different thicknesses of the amorphous carbon foil.

Figures 3.19a and 3.19b show two more examples of energy distributions for thicknesses 2 and 4.3  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$  and an initial beam velocity  $v = 4.47$  a.u. We have obtained the mean energy loss for other thicknesses between 2 and 8  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , which are depicted in figure 3.20 together with the experimental results. If we obtain the stopping power from this figure and we add it to the comparative figure 3.9a, we deduce that the mechanism of recombination is the main process in this experiment. Figure 3.21 presents the square of the full width at the half maximum (FWHM) versus the thickness of the foil, from this figure we can obtain the following value for the square root of the straggling:  $\Omega = 1.27 \pm 0.16$  a.u. If we put this value in the comparative figure 3.9b, we see that this value is more similar to the value of the straggling characteristic of a transmission of recombined  $\text{H}_2^+$  molecules.

Finally we analyse the experiment of Susuki *et al.* [1994] corresponding to a velocity  $v = 19.6$  a.u., for thicknesses between 1.5 and 8.5  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Figure 3.22 shows that the number of transmitted ions falls quickly like the first term of the right hand side of the equation (3.2), so we conclude that it is a original transmission process [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2004].

In figure 3.23 we show an example of the experimental energy distributions calculated for a foil thickness of 915 a.u.. The stopping power obtained from this figure is  $1.81 \pm 0.15 \times 10^{-2}$  a.u. Comparing this result in our reference figure 3.9a we notice that the obtained value is closer to the value of the stopping corresponding to  $\text{H}_2^+$  ion than twice the stopping for the case of the proton, as it would be for an original transmission process. The value for the square root of the straggling obtained from the width of the graph is  $\Omega = 1.45 \pm 0.1$  a.u. This value is higher than the theoretical result for the  $\text{H}_2^+$  ion, but we can think that it is because the incident beam already has a considerable energy width.

## **$\text{H}^+$ energy distributions**

Figure 3.24 shows the energy distribution measured for dissociated fragments leaving an aluminum foil of thickness 359 a.u. in the initial direction of the  $\text{H}_2^+$  ion beam, for diverse incident energies, centered in the mean energy of the spectrum [Denton *et al.* 2002]. Also the measured energy distributions corresponding to projectiles  $\text{H}^+$  are shown for the same incident velocities. The comparison of the different energy spectra, for  $\text{H}_2^+$  and  $\text{H}^+$ , shows the changes of the molecular effects as a function of the incident beam energy.

We indicate with vertical lines in figure 3.24 the energy width corres-

ponding to a hypothetical Coulomb explosion in the vacuum for a  $\text{H}_2^+$  molecule with a initial internuclear distance of 2.44 a.u. The figure shows a transition from almost a total screening of the Coulomb explosion for the smallest energy until almost a non screening for the highest energy.

Processes of charge exchange have been incorporated in the simulation program choosing, each certain time step, the equilibrium neutral charge fraction  $\phi_0$ , which is a parameter of the simulation. For each time step we have used the values of the vicinage forces, electronic stopping and Coulomb repulsion corresponding to each chosen charge state.

The consideration of the Coulomb explosion out of the foil is important because the Coulomb explosion that happens inside the material is not complete. We have convoluted the theoretical distributions with Gaussians whose width depends on the roughness coefficient of the foil and on the energy resolution of the experimental detector (appendix D). Figure 3.25 shows the convoluted theoretical energy distributions corresponding to figure 3.24. We have included the calculations for different neutral charge fractions,  $\phi_0$ , to determine which fits better to the experimental distributions.

Figure 3.26 shows the results of  $\phi_0$  obtained with this method, versus the incident energy of the projectile. We have also included in the figure a theoretical estimation [Arnau 1989] and some experimental results [Phillips 1955, Allison 1958, Kreussler and Sizmann 1982] of the neutral charge fraction for protons exiting aluminum foils.

To prove the sensibility of our calculations to the charge fractions  $\phi_+$  and  $\phi_0$  we have depicted in figure 3.27 the simulated energy distributions of the dissociated protons from 1 MeV  $\text{H}_2^+$  beam picked up by a detector after traversing an amorphous carbon foil of thickness  $2.1 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  [Abril *et al.* 2004]. We have drawn the energy distributions for three different values of the neutral fraction:  $\phi_0 = 0$ , 0.005, and 0.01. We have chosen the value  $\phi_0 = 0.005$  as the value that fits better to the experimental data (figure 3.28a). This value is the one we will use in the calculations of the energy distributions for all the thicknesses used in the experiments represented in figure 3.28.

## $\text{H}_3^+$ transport

There are many differences between the transport of  $\text{H}_2^+$  and  $\text{H}_3^+$  ions. The first one is linear, while the second one is triangular, so  $\text{H}_3^+$  molecules

offer the possibility to investigate new effects related with their molecular plane orientation.

The recombination of the  $\text{H}_3^+$  ion is not very probable since it would imply the capture of two electrons of the medium.

Certain fraction of  $\text{H}_3^+$  ions are dissociated in  $\text{H}_2^+$  ions, but not all  $\text{H}_2^+$  ions are direct products of the  $\text{H}_3^+$  dissociation, since some  $\text{H}_2^+$  ions are result of a recombination of  $\text{H}^+$  fragments. The direct dissociation of the  $\text{H}_3^+$  ion in  $\text{H}_2^+$  ions can take place in two ways: (1)  $\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}_2^+ + \text{H}^+ + e^-$  or (2)  $\text{H}_3^+ \rightarrow \text{H}_2^+ + \text{H}^0$ , so we have analysed the new vicinage effects for these dissociations. We arrive to the complete  $\text{H}_3^+$  dissociation through the direct dissociation in  $\text{H}^+$  ions or through the dissociation in  $\text{H}_2^+$  ions if the latter are dissociated in  $\text{H}^+$ .

## Initial geometry

The most stable configuration of the  $\text{H}_3^+$  ion is an equilateral triangle [Gaillard *et al.* 1978b, Gemmell 1980], defined by its side distance  $R$  (figure 4.1). The value of the side distance of the triangle depends on the vibrational state of the molecule.

To characterize the initial geometry of the molecule in our simulation we use the appropriated initial distribution of  $R$  for each experiment. If the experiment has been carried out using a cooling method for the molecules after being accelerated, we will use a Gaussian distribution for the ground level ( $\bar{R}_0 \simeq 1.71$  a.u. and  $\sigma_0 \simeq 0.18$  a.u. [Lammich 2001]); for the other situations we use a Gaussian distribution of the side distance of the molecule that arrives excited to the foil, found experimentally for each case ( $\bar{R} \simeq 1.9$  a.u., and  $\sigma \simeq 0.4$  a.u. [Gaillard *et al.* 1978b, Gemmell 1980]).

Once it is known the distribution to use, we draw the side distance of the triangle according to the chosen distribution. Then, we build an equilateral triangle formed by the three protons from the drawn distance and we obtain a random orientation of this triangle through the draw of the Euler angles explained in section 2.1.

## Lifetime

The equation (3.2) for the case of the  $\text{H}_3^+$  ion will only make sense for the first term of the right, being:

$$Y_3(t) = \exp(-t/\tau_3),$$

where  $\tau_3$  is the lifetime of the  $\text{H}_3^+$  molecular ion.

We can also write an equation for the fraction of  $\text{H}_2^+$  ions dissociated from  $\text{H}_3^+$  ions as a function of the dwell time and of a “dissociation lifetime”  $\tau_{3\rightarrow 2}$ :

$$Y_{3\rightarrow 2}(t) = \frac{\tau_2 \tau_3}{\tau_{3\rightarrow 2}(\tau_2 - \tau_3)} [\exp(-t/\tau_2) - \exp(-t/\tau_3)].$$

In figure 4.3 we see the experimental results obtained by the Kyoto group [Susuki *et al.* 1995] and for the Lyon group [Cue *et al.* 1979a]. French and Japanese experimental groups obtained the values  $\tau_3 = 0.118 \pm 0.013$  fs and  $\tau_3 = 0.13 \pm 0.02$  fs, respectively, from the fit of equation (4.1) to their results. The lifetime value obtained by Susuki *et al.* [1995] is more recent and their data fit better to an exponential, so we use their value in our simulation program. We notice that  $\tau_3 \simeq \tau_2/2$ , where  $\tau_2$  has been found in chapter 3; besides, we know from bibliography [Cue *et al.* 1979a] that  $\tau_2 \simeq \tau_1$ , where  $\tau_1$  is the hydrogen atom  $\text{H}^0$  lifetime for the same velocity and for the same material. This confirms that the lifetime is inversely proportional to the dissociation probability and can be characterized in terms of valence electrons of the molecule.

The lifetime  $\tau_{3\rightarrow 2}$  is obtained fitting equation (4.7) to the transmitted  $\text{H}_2^+$  fraction (figure 4.4) resulting from incident  $\text{H}_3^+$  ions, as a function of the dwell time. We have to restrict this calculation to small dwell times because for sufficiently larger dwell times the  $\text{H}_2^+$  recombination process becomes predominant. The fitted value, which implemented in our simulation program gives better result, is  $\tau_{3\rightarrow 2} = 0.72$  fs.

## Electronic stopping of the $\text{H}_3^+$ ion

The main objective of this section is the theoretical calculation of the electronic stopping of the  $\text{H}_3^+$  ion to first order of the Born’s approximation and the comparison with the theoretical and experimental results already published.

The charge density of the  $\text{H}_3^+$  ion is:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\vec{r}, t) = & Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{a}) + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{b}) \\ & + Z_1 \delta(\vec{r} - \vec{v}t - \vec{c}) - 2\rho_{\text{el}}(\vec{r} - \vec{v}t). \end{aligned}$$

where  $Z_1$  is the charge and  $\vec{a}$ ,  $\vec{b}$  and  $\vec{c}$  are the positions of the protons from the center of the equilateral triangle that they form; and  $2\rho_{\text{el}}(\vec{r}, t)$  is the charge

density of the two electrons of molecule. If the triangle side distance is  $R$ , the proton distances from the center are  $R/\sqrt{3}$ .

The electronic density of the  $\text{H}_3^+$  ion is due to two bound electrons in the ground state forming a molecular singlet with opposed spines. The Gaussian molecular orbital is a linear combination of Gaussian atomic orbitals. We use Gaussian orbitals since these ones gave a better result in the variational calculation for the case of the  $\text{H}_2^+$  ion:

$$\phi_{\text{el}}(\vec{r}) = N_{\text{G}} [\varphi_{\text{G}}(\vec{r} - \vec{a}) + \varphi_{\text{G}}(\vec{r} - \vec{b}) + \varphi_{\text{G}}(\vec{r} - \vec{c})]$$

where the  $\varphi_{\text{G}}(\vec{r})$  function is the same one than for the case of the  $\text{H}_2^+$  ion,  $\alpha$  is the orbital parameter and  $N_{\text{G}}$  is the normalization factor:

$$N_{\text{G}} = \left\{ \frac{1}{3[1 + 2 \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}.$$

The values of  $R$  and  $\alpha$  are obtained from the variational calculation, giving  $R_{\text{m}} = 1.695$  a.u. and  $\alpha = 0.475$  a.u.

To calculate the electronic stopping and straggling, equations (1.1) and (1.3), respectively, of the molecular  $\text{H}_3^+$  ion we need to calculate the Fourier transform of its charge density  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$ :

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\vec{k}) = & Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{a}} + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{b}} + Z_1 e^{-i\vec{k}\vec{c}} - 2.N_{\text{G}}^2 \rho(k) \left[ e^{-i\vec{k}\vec{a}} + e^{-i\vec{k}\vec{b}} + e^{i\vec{k}\vec{c}} \right. \\ & \left. + 2e^{-\alpha R^2/2} (e^{i\vec{k}\vec{a}/2} + e^{i\vec{k}\vec{b}/2} + e^{i\vec{k}\vec{c}/2}) \right]. \end{aligned}$$

If we take the square of  $\rho_{\text{ext}}(\vec{k})$  and average it for all angle between  $\vec{k}$  and  $\vec{R}$ , we obtain:

$$\begin{aligned} \langle \rho_{\text{ext}}^2(k) \rangle_{\text{ang}} = & 3\mathcal{A}^2(k) \left[ 1 + 2 \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + 3\mathcal{B}^2(k) \left[ 1 + 2 \frac{\sin(kR/2)}{kR/2} \right] \\ & - 6\mathcal{A}(k)\mathcal{B}(k) \left[ \frac{\sin(\sqrt{3}kR/2)}{\sqrt{3}kR/2} + 2 \frac{\sin(kR/2)}{kR/2} \right], \end{aligned}$$

where  $\mathcal{A}(k) = Z_1 - \frac{2}{3}\mathcal{C}(k)$ ,  $\mathcal{B}(k) = \frac{4}{3}e^{-\alpha R^2/2}\mathcal{C}(k)$  and  $\mathcal{C}(k) = e^{-k^2/8\alpha}/1 + 2 \exp(-\alpha R^2/2)$ .

In figures 4.6 and 4.7 we can compare our result with the one obtained by Kaneko [1995] with his ELF [Kaneko 1989] and with the triple of the electronic stopping corresponding to a single proton. We have also included the experimental value obtained by Susuki *et al.* [1995] for a velocity  $v = 19.6$  a.u.



## $\text{H}_2^+$ - $\text{H}^+$ vicinage effects

In this section we study the electronic vicinage effects between a  $\text{H}_2^+$  ion and a  $\text{H}^+$  ion or a  $\text{H}^0$  atom, resulting from the dissociation of a  $\text{H}_3^+$  ion. We use the formulas of the electronic vicinage forces, equations (1.11) and (1.12) of chapter 1.

We calculate the Fourier transform of the charge density of the  $\text{H}_2^+$  ion,  $\rho_{\text{ext1}}(\vec{k})$ , centered in one of the protons and being  $\vec{P}$  the internuclear distance. We know that  $e^{-i\vec{k}\vec{P}}$  only implies a displacement  $\vec{P}$  in the real space, so we can rearrange  $\rho_{\text{ext1}}(\vec{k})$  in the following way [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext1}}(\vec{k}) = & [Z_1 - N_G^2 \rho(k)] + [Z_1 - N_G^2 \rho(k)] e^{-i\vec{k}\vec{P}} \\ & - N_G^2 \rho(k) 2 e^{-\alpha P^2/2} e^{-i\vec{k}\vec{P}/2}. \end{aligned}$$

The Fourier transform of the charge density of the  $\text{H}^+$  ion and of the  $\text{H}^0$  atom are:

$$\rho_{\text{ext2}}(k) = 1$$

and

$$\rho_{\text{ext2}}(k) = \left[ 1 - \frac{1}{\left(1 + \left(\frac{k}{2}\right)^2\right)^2} \right],$$

respectively.

If we break down  $\vec{P}$  in their parallel and perpendicular coordinates,  $P_{\parallel}$  and  $P_{\perp}$ , respectively, and we calculate the vicinage forces in their parallel and perpendicular components, we have left [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]:

$$\begin{aligned} F_{z'\text{H}_2^+ - \text{H}^+}(z', \rho) = & F_{\text{I}z'}(z', \rho) + F_{\text{I}z'}(z' - P_{\parallel}, \rho - P_{\perp}) \\ & + 2 e^{-\alpha P^2/2} F_{\text{II}z'}(z' - P_{\parallel}/2, \rho - P_{\perp}/2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} F_{\rho\text{H}_2^+ - \text{H}^+}(z', \rho) = & F_{\text{I}\rho}(z', \rho) + F_{\text{I}\rho}(z' - P_{\parallel}, \rho - P_{\perp}) \\ & + 2 e^{-\alpha P^2/2} F_{\text{II}\rho}(z' - P_{\parallel}/2, \rho - P_{\perp}/2) \end{aligned}$$

where  $F_{\text{I}z'}$  and  $F_{\text{I}\rho}$  are calculated for a density  $\rho_{\text{ext1}}(k) = Z_1 - N_G^2 \rho(k)$ , while  $F_{\text{II}z'}$  and  $F_{\text{II}\rho}$  are calculated for a density  $\rho_{\text{ext1}}(k) = -N_G^2 \rho(k) 2 e^{-\alpha P^2/2}$ .

We calculate the vicinage forces between a  $\text{H}_2^+$  ion and a  $\text{H}^+$  ion for two special cases:  $v = 5$  a.u.,  $\rho = 0$  and  $z'$  varying in the range  $-25$  to  $10$  a.u. In the first case we make  $P_{\parallel} = |\vec{P}|$  and  $P_{\perp} = 0$ , *i.e.* the internuclear vector of the  $\text{H}_2^+$  ion is oriented in the direction of its velocity (figure 4.9) and in the second case we make  $P_{\parallel} = 0$  and  $P_{\perp} = |\vec{P}|$ , *i.e.* the internuclear vector of the  $\text{H}_2^+$  ion is perpendicular to its velocity (figures 4.10 and 4.11).

In figure 4.12 we see the difference between the vicinage force for  $v = 5$  and  $8$  a.u. in the  $z'$  direction for the first case. Finally, the vicinage force is depicted in vectorial form for the first case (figure 4.13). The magnitude of these forces is similar to that of the vicinage forces between two protons (figure 4.14a).

## $\text{H}_2^+$ energy distributions

In section 4.5 we analyse the experimental energy spectra of  $\text{H}_2^+$  ions resulting from the dissociation of the  $\text{H}_3^+$  ions. We see in that section that the spectrum of energy shows three peaks. The two external peaks are the result of the Coulomb repulsion between the fragments of the type (1) dissociation, on the other hand the central peak is due to the lack of this repulsion in the type (2) dissociation. Thanks to this characteristic spectrum we can even predict *grosso modo* which is the ratio between type (1) and type (2) dissociations.

The difference between the energy of the external peaks is:

$$\Delta E_{\text{peaks}} = 4\sqrt{\frac{2E_d E}{3}},$$

where  $E$  and  $E_d$  are the initial and dissociation energy per atomic mass unit, respectively.

Figure 4.15 represents the energy spectra, experimental [Cue *et al.* 1979b] and calculated by us, of  $\text{H}_2^+$  ions that exit the foil with  $0^\circ$  angle with respect to the axis of incidence of the  $\text{H}_2^+$  ion beam with an initial velocity  $v = 5.42$  a.u., for amorphous carbon foil of thickness  $171.9$  a.u. [Barriga-Carrasco y Garcia-Molina 2003]. The situation of the central peak near zero is due to the type (2) dissociation and it indicates us that  $E_d$  is very small,  $E_d = 10.13$  eV.

Asymmetry in the peak heights is explained in terms of the vicinage effects commented in section 4.4.

In figure 4.16 we show the same spectra as in figure 4.15 but with an incident beam velocity  $v = 19.6$  a.u. and for all angles. The ratio between the type (2) and type (1) dissociations obtained with our simulation program is 13 % bigger than the one obtained for the previous spectra. We obtain a value of  $E_d = 12.02$  eV. This value of  $E_d$  and the one from the previous experiment are smaller than the value of the initial electric potential energy  $E_e = 16.95$  eV, so we conclude that the fragments change their states, from the disassociative state (1) to the (2) and vice versa, during their travel in the foil.

### $H^+$ energy and angle distributions

In section 4.6 we study the energy and angle distributions of the protons that emerge from thin foils after  $H_3^+$  ions are dissociated inside. We suppose for the theoretical calculation that the  $H_3^+$  ion is dissociated in three protons from the beginning. The neutral fraction is negligible for the experiment velocities, so we have done our calculations without it.

In figure 4.17 we present the zero angle energy spectra obtained for  $H_3^+$  molecules impinging with a velocity  $v = 5.17$  a.u. in an amorphous carbon foil of thickness 105 and 380 Å (figures 4.17a and 4.17b, respectively). The acceptance of the detector is  $0.12^\circ$  and its energy resolution is 5 keV (full width at the half maximum, FWHM). The symbols correspond to experimental results [Gemmell *et al.* 1975] and the histogram is our simulation. The spectra show two peaks, as we expect from a Coulomb repulsion of three protons that form an equilateral triangle [Gaillard *et al.* 1978b].

Figure 4.18 shows the zero angle energy distribution corresponding to the experiment of Argonne [Gaillard *et al.* 1978b], and calculated by us for dissociated  $H_3^+$  molecules impinging with a velocity  $v = 5.29$  a.u. in an amorphous carbon foil of thickness 140 Å. The acceptance of the detector is  $0.013^\circ$  and its energy resolution is 0.42 keV. We see a small central peak in the experimental spectrum, as we have not included the neutral fraction in our simulation program and we do not obtain this central peak we suppose that it is due to the neutral fraction that cancel the Coulomb repulsion.

Figures 4.19 and 4.20 represent the experimental [Gaillard *et al.* 1978b] and calculated angle distributions of protons arriving to the detector with an energy of 700 keV and for all energies, respectively.

Finally we analyse the energy spectrum of the dissociation of the  $H_3^+$  molecule obtained by Miao *et al.* [1986]. The experiment was carried out for

a velocity of the incident beam of  $v = 5.24$  a.u. and for a carbon foil thickness of  $150 \text{ \AA}$ . The acceptance of the detector that we suppose in the simulation is  $0.013^\circ$ , since it is the one that better fits the experimental data. The energy resolution of the experimental detector is  $0.12 \text{ keV}$ .

## Geometry at the exit of the foil

The experiments that we analyse in this section were done in a storage ring, where  $\text{H}_3^+$  molecule are desexcited until being in the ground state [Wester 1999], so we use the ground state Gaussian distribution of internuclear initial distances.

The study that we present in this section is merely qualitative, since the calculations are carried out for amorphous carbon and aluminum foils, while the experimental results have been done with a formvar foil.

The distributions of the relative distances between the protons at the arrival to the detector are shown in figure 4.22 for some characteristic initial orientations of the  $\text{H}_3^+$  molecule, where the leading, intermediate and trailing protons are labeled 1, 2 and 3, respectively. Figure 4.23 shows the distributions of relative distances for an initial random orientation, and different incident velocities and amorphous carbon foil thicknesses. Figure 4.24 shows the same calculations but for an aluminum foil.

In figure 4.26a we depict the calculated distribution of probabilities of the angle  $\theta$  between the beam direction and the normal angle of the plane formed by the three dissociated protons that arrive to the detector after traversing an amorphous carbon foil. Figure 4.26b shows the same distribution for the experiment with a formvar foil.

If we normalize the previous relative interproton distances to the time that the protons take to reach the detector and we calculate the characteristic distances of the vibration modes of the molecule, the results have velocity units. Figure 4.27 presents an experimental gray scale of the histories picked up at the detector, as a function of these velocities and of  $\cos \theta$ , corresponding to the dissociated fragments of  $\text{H}_3^+$  ions impinging with a velocity  $v = 4.38$  a.u. in a  $30 \text{ \AA}$  thick formvar foil [Kreckel 2000].

Figure 4.28 shows the same figures obtained with our simulation program for the same conditions of the experiment, but for an amorphous carbon foil, instead of formvar.

Both simulations of the interproton distance distributions and the qualitative study of the normal angle of the plane formed by the three dissociated

protons versus the vibration modes velocities, indicate the importance of considering the vicinage effects while the molecular fragments travel inside the foil.

## $\text{H}_n^+$ transport

In chapter 5 we study the dissociated fragments of the  $\text{H}_n^+$  ions (for  $n = 5, 7$  and  $9$ ) that we compare with the previously studied smaller ions ( $n = 1, 2$  and  $3$ ). Specifically we analyse the stopping, the angle and internuclear distance distributions of the dissociated fragments after exiting amorphous carbon foils.

### Initial geometry

The experimental results depend on the initial structure of the hydrogen cluster.  $\text{H}_n^+$  ion clusters are formed by a  $\text{H}_3^+$  central ion with an equilateral triangle geometry that serves as nucleation agent for  $\text{H}_2^+$  ions.

The initial geometry of the  $\text{H}_5^+$ ,  $\text{H}_7^+$  and  $\text{H}_9^+$  ions can be seen in figure 5.1. The different distances and angles defining the ions structure have been taken for the state of minimum energy [Farizon *et al.* 1991], and appear in table 5.1. The equilateral triangle structure of the  $\text{H}_3^+$  central ion is broken by the asymmetric number of  $\text{H}_2^+$  units contained in  $\text{H}_5^+$  and  $\text{H}_7^+$  clusters.

### A model for the electronic loss and capture

When dissociated protons are still very close an enhancement in the electronic capture takes place, while when they are more separated electronic capture returns to a characteristic values of isolated ions [de Castro Faria *et al.* 1986b]. In section 5.2 we extend a model developed by Farizon *et al.* [1997] to calculate the electronic capture enhancement, or the increase in the  $\text{H}^0$  fraction of the dissociated fragments from hydrogen clusters.

The inverse of the neutral fraction  $\phi_0^i$  of a proton surrounded by  $n - 1$  neighbour protons is:

$$\frac{1}{\phi_0^i} = \frac{I_{\text{sol}}}{I_{\text{sol}}^i} \left( \frac{1}{\phi_0} - 1 \right) + 1.$$

where  $I_{\text{sol}}$  is the ionization energy of a hydrogen atom in a solid, obtained from the bibliography [Rogers *et al.* 1970],  $I_{\text{sol}}^i$  is the ionization energy of a

hydrogen atom surrounded by  $n-1$  neighbours, obtained from equation (5.4), and  $\phi_0$  is the neutral fraction obtained for isolated protons from Farizon *et al.* [1997] experimental results.

In figure 5.2 we represent by filled symbols the experimental neutral fraction [Farizon *et al.* 1997] coming from the dissociation of hydrogen clusters that impinge with velocities 1.1, 1.27, 1.55, 1.79 and 2.19 a.u. in amorphous carbon foils of different thickness (240.6 and 389.5 a.u.). The results obtained with our simulation program, using the previous equation, appear represented by open symbols.

The neutral fraction increases with the number of hydrogens of the cluster for the same velocity and for the same foil thickness. This effect is reflected in the model when we increase the number of additional terms in the equation (5.4) according to the number of hydrogens of the cluster.

For the same velocity, the neutral fraction enhancement with the number of hydrogens is different according to the thickness of the foil, what presupposes a direct dependence with the internuclear distance that is also included in our model. Finally, let us say that the neutral fraction globally diminishes with the cluster incident velocity, such fact that is taken into account in the neutral fraction value  $\phi_0$  for the case of the isolated proton.

## Distributions of dissociated $H^+$

In section 5.3 we suppose in our calculations that hydrogen clusters are totally dissociated in their protons just after entering in the foil. The experimental [Farizon *et al.* 1992] and calculated angle distributions of the dissociated hydrogen atoms from  $H_7^+$  ions are presented, when  $H_7^+$  ions impinge with a velocity  $v = 1.79$  a.u. on a 389.5 a.u. thick amorphous carbon foil (figure 5.3a) and  $H^0$  dissociated from  $H_9^+$  ions that impinge with a velocity  $v = 1.55$  a.u. on a 229.1 a.u. thick amorphous carbon foil.

The width of the angle distributions is related directly with the Coulomb repulsion inside the foil. If we represent the experimental full width at the half maximum (FWHM) of these distributions as a function of the number of hydrogens in the cluster, for different velocities and for a 229.1 a.u. thick amorphous carbon foil, we obtain figure 5.4. From our calculation we see that a neutral fraction inside material  $\phi_{0\text{int}}$  cancel Coulomb repulsion (see figure 5.4,  $v = 1.55$  a.u.,  $\phi_{0\text{int}} = 0.4$ ). For this reason we have carried out our calculations with a probability of electronic capture at the exit surface of the foil,  $\phi_{0\text{sup}}$ .

In figure 5.5b we can see the experimental results from Eckardt *et al.* [1978] and from Ray *et al.* [1992] for the cluster electronic stopping relative to the proton one, as a function of the number of their hydrogens, for a velocity  $v = 1.55$  a.u. and an amorphous carbon foil of thickness 343.7 a.u. We add to this figure our calculated results using a neutral fraction inside the material,  $\phi_{0\text{int}}$ , and a neutral fraction only at the surface,  $\phi_{0\text{sup}}$ . We see that the calculation that better fits the experimental results is when we use a neutral fraction inside.

Finally we will represent the distributions of relative distances between the fragments at the exit of a 229.1 a.u. thick amorphous carbon foil for an initial velocity  $v = 1.55$  a.u. (figure 5.6). Our calculations are closer to the calculations from Farizon *et al.* [1992] when we include in our program a neutral fraction in the surface.

It could be that the initial distance distribution is not the same for the two calculations. If for the simplest cluster,  $\text{H}_2^+$ , we use a Gaussian distribution with a certain width, defined by the square root of their variance,  $\sigma$ , we can check how the change of this variance affects the final distance distribution. Figure 5.7 shows how our calculations vary with two Gaussian distributions of the initial interproton distances with different  $\sigma$ .

In conclusion, in that chapter we have met two opposed results. The analysis of the angle and internuclear distance distributions has taken us to think that there is not a neutral fraction inside the material, while the analysis of the energy distributions makes us think the opposite. This could be because when we calculate the stopping with our simulation program we treat the fragments with a certain charge density, while when we calculate the Coulomb repulsion (main responsible of the deviation of the fragment initial trajectory and of the increase of the internuclear distances) we treat the fragments as point charges.

# Conclusions

The main conclusions of this work are the following ones:

- A simulation program that allows to analyse with great detail experiments of interaction of molecular projectiles with thin foils has been created.
- Using the dielectric formalism and an energy loss function that describes properly the stopping power of the electronic medium of the material, we have seen that the electronic stopping of the hydrogen atom is smaller than the electronic stopping of a proton, and that the electronic stopping of the  $\text{H}_2^+$  and  $\text{H}_3^+$  molecular ions is smaller than twice and the three times that of a proton, respectively.
- Also, we have found the electronic vicinage effects in the  $\text{H}_2^+ - \text{H}^+$  system, which are similar to those of the  $\text{H}^+ - \text{H}^+$  system. The vicinage effects tend to align the dissociated fragments from the molecular ions in the beam direction. This effect is shown clearly in the asymmetric heights of the Coulomb peaks that appear in the energy spectra of the dissociated protons from the  $\text{H}_2^+$  or  $\text{H}_3^+$  molecule. This effect has been also seen in the distributions of relative distances between the protons resulting from the total dissociation of the  $\text{H}_3^+$  ion, since the mean value of the distribution of the relative distances between the two trailing protons is smaller than the mean value of the respective distributions for the two leading protons. Finally the fact that the more probable value of the angle between the normal to the plane subtended by the three protons and the beam direction is  $90^\circ$  is another manifestation of the alignment tendency, consequence of the electronic vicinage effects.
- A model to incorporate the electronic loss and capture processes by atomic fragments dissociated from hydrogen clusters has been estab-



lished. We have checked that the electronic loss and capture processes by an atomic projectile are influenced by the presence of neighbour fragments coming from the same dissociation and depend on the distance  $R_{ij}$  between them and on the beam velocity.

- The transport of dissociated and non-dissociated  $H_2^+$  molecular ions through thin foils has been simulated. Implementing in the simulation program the recombination process of the  $H_2^+$  ion we have checked that it depends on the fact that two protons capture an electron at the exit surface of the foil, that the system formed by the two protons and the electron has an internal energy smaller than the relative maximum of the effective potential corresponding to the ground electronic level of the  $H_2^+$  ion and that the interproton distance must be comprised between the values of the classic turning points of the effective potential well. We have shown that the energy loss of an original transmitted  $H_2^+$  ion is the characteristic energy of a molecular ion while the energy loss of a recombined  $H_2^+$  ion is the characteristic energy of two protons traveling together through the material.
- The transport of dissociated and non-dissociated  $H_3^+$  molecular ions through thin foils has been simulated. We have corroborated that the initial geometry of the  $H_3^+$  ion is an equilateral triangle, which is the only geometry resulting in two peaks in the energy and the angle spectra. The initial equilateral triangle side distance depends on the experimental conditions and affects in a sizable manner the final results. We have found in the  $H_2^+$  ions energy spectra resulting from  $H_3^+$  ions an asymmetry in the height of the Coulomb peaks opposite to the one found in the atomic dissociated fragments; this asymmetry is only due to the characteristic vicinage effects of the  $H_2^+$  ion. Also we have seen that from the different peaks of the energy spectra we can see *grosso modo* which kind of  $H_3^+$  dissociation into  $H_2^+$  takes place.
- Finally, the transport of larger hydrogen molecular ions,  $H_n^+$  ( $n = 5, 7$  and  $9$ ) has been studied. Here we have found two opposite results. The analysis of angle and interproton distance distributions suggests that there is not a fraction of neutral fragments traveling inside the foil, while the analysis of energy distributions implies the contrary.

# Publications

The work done during this Ph. D has resulted in the following papers published in international scientific journals with referee (see appendix E):

- Denton C. D., I. Abril, M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, G. H. Lantschner, J. C. Eckardt y N. R. Arista 2002, Effect of the neutral charge fraction in the coulomb explosion of  $H_2^+$  ions through aluminum foils, Nucl. Instr. Meth. B **193**, 198.
- Garcia-Molina R. y M. D. Barriga-Carrasco 2003, Simulation of the molecular recombination yield for swift  $H_2^+$  ions through thin carbon foils, Phys. Rev. A **68**, 054901.
- Barriga-Carrasco M. D. y R. Garcia-Molina 2003, Vicinage forces between molecular and atomic fragments dissociated from small hydrogen clusters and their effects on energy distributions, Phys. Rev. A **68**, 062902.
- Abril I., Denton C. D., M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, K. Kimura y N. R. Arista 2004, Influence of electron capture and loss in the energy distribution of protons dissociated from fast  $H_2^+$  molecules in thin carbon foils, Phys. Stat. Sol. (c) **1**, S21-S25.
- Barriga-Carrasco M. D. y R. Garcia-Molina 2004, Simulations of the energy spectra of original versus recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin foils, Phys. Rev. A **70**, 032901.



# Apéndice



# Apéndice A

## Unidades atómicas y de espesor

### Unidades atómicas

El sistema de unidades atómicas (a.u.) se introduce por conveniencia para simplificar la escritura de muchas expresiones en las cuales aparecen con frecuencia diversas combinaciones de las siguientes constantes:

- masa del electrón,  $m$
- carga del electrón,  $e$
- constante de Planck reducida,  $\hbar = h/(2\pi)$ .

Por ello se toman estas magnitudes como las fundamentales en este sistema, de modo que en él se verifica que:

$$m = e = \hbar = 1, \tag{A.1}$$

que junto al valor  $\varepsilon_0 = 1/4\pi$  para la permitividad en el vacío  $\varepsilon_0$ , simplifica notablemente la escritura de las expresiones y agiliza enormemente todos los cálculos.

En la tabla A.1 se presentan las unidades atómicas de algunas magnitudes que se emplean habitualmente. La primera columna identifica las unidades, mientras que la segunda y tercera columnas, respectivamente, dan las correspondientes expresiones y valores en el Sistema Internacional (S. I.).

Las unidades atómicas de masa y carga son la masa y la carga del electrón respectivamente; la unidad atómica de energía es el hartree ( $E_0 = 27.21$  eV), que corresponde al doble de la energía del estado fundamental del átomo de

Unidades atómicas	S.I.	S.I.
1 a.u. de masa	$m$	$9.11 \times 10^{-31} \text{ kg}$
1 a.u. de carga	$e$	$1.60 \times 10^{-19} \text{ C}$
1 a.u. de energía	$E_0 = me^4/(4\pi\epsilon_0\hbar)^2$	$4.36 \times 10^{-18} \text{ J}$
1 a.u. de distancia	$a_0 = 4\pi\epsilon_0\hbar^2/me^2$	$5.29 \times 10^{-11} \text{ m}$
1 a.u. de velocidad	$v_0 = e^2/(4\pi\epsilon_0\hbar)$	$2.19 \times 10^6 \text{ m/s}$
1 a.u. de tiempo	$t_0 = (4\pi\epsilon_0)^2 \hbar^3/me^4$	$2.42 \times 10^{-17} \text{ s}$

Tabla A.1: Definición de las unidades atómicas de algunas magnitudes que se emplean habitualmente y su equivalencia en el S. I.

hidrógeno. La unidad atómica de distancia es el radio de la primera órbita de Bohr del átomo de hidrógeno ( $a_0 = 0.529 \text{ \AA}$ ). La unidad atómica de velocidad es la velocidad de la luz en el vacío,  $c$ , multiplicada por la constante de estructura fina ( $\alpha = 1/137.077$ ) que da lugar a la velocidad de Bohr,  $v_0$ . Y la unidad atómica de tiempo es el tiempo que tarda electrón en la primera órbita de Bohr en recorrer una unidad de distancia atómica,  $t_0$ .

Es habitual en física tener que manejar velocidades y energías cinéticas, estando, estas últimas, expresadas en electronvoltios o alguno de sus múltiplos. Por ello, a continuación se relacionan dichas magnitudes involucrando unidades atómicas.

Dado un ion de masa  $M$  (en unidades de la masa del protón), cuya velocidad es  $v$  (expresada en unidades atómicas), su energía cinética (expresada en keV) está dada por:

$$E(\text{keV}) = 24.981 M v^2(\text{a.u.}). \quad (\text{A.2})$$

Esta relación se deriva de la expresión bien conocida,  $E = mv^2/2$ , y teniendo en cuenta que la masa del ion, en unidades atómicas, está dada por  $1836.156M$ . Análogamente, para el caso de un electrón, tendríamos:

$$E(\text{eV}) = 13.605 v^2(\text{a.u.}). \quad (\text{A.3})$$

Una vez conocido el valor de las unidades atómicas en el S.I., podemos reescribir en el S. I. las principales fórmulas de la interacción de iones utilizadas en este trabajo.

- Autofrenado electrónico, ecuación (1.1):

$$S_p = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2e^2}{\pi v^2 a_0^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho_{\text{ext}}^2(k). \quad (\text{A.4})$$

- Straggling electrónico, ecuación (1.3):

$$\Omega^2 = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2e^2}{\pi v^2 a_0} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho_{\text{ext}}^2(k). \quad (\text{A.5})$$

- Fuerza de vecindad electrónica paralela, ecuación (1.11):

$$\begin{aligned} F_{z'}(z', \rho) = & \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2e^2}{\pi v^2 a_0^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_0(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ & \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \sin(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ & \left. + \cos(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.6})$$

- Fuerza de vecindad electrónica perpendicular, ecuación (1.12):

$$\begin{aligned} F_\rho(z', \rho) = & \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{2e^2}{\pi v a_0^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega J_1(\rho \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \\ & \times \rho_{\text{ext1}}(k) \rho_{\text{ext2}}(k) \left\{ \cos(\omega z'/v) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ & \left. - \sin(\omega z'/v) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\}. \end{aligned} \quad (\text{A.7})$$

## Unidades de espesor

También es habitual encontrar que en los trabajos experimentales se exprese el espesor  $D$  de una lámina en unidades de  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ . Esto se debe a que el procedimiento usual para caracterizar las láminas consiste en pesarlas y, conociendo la superficie de éstas, es posible calcular la masa por unidad de área.

A partir del espesor  $D$  expresado en unidades de  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ , se puede obtener el espesor  $D$  en unidades de longitud ( $\text{\AA}$  o a.u.) empleando una de las dos relaciones siguientes:



$$D (\text{\AA}) = \frac{D [\mu\text{g}/\text{cm}^2]}{\rho [\text{g}/\text{cm}^3]} 10^2 \quad (\text{A.8})$$

$$D (\text{a.u.}) = \frac{D [\mu\text{g}/\text{cm}^2]}{\rho [\text{g}/\text{cm}^3]} \frac{10^2}{0.529} \quad (\text{A.9})$$

donde  $\rho$  es la densidad del material en unidades de  $\text{g}/\text{cm}^3$ .

Conviene notar que la densidad de algunos materiales es un valor bien conocido, pero hay otros materiales, como el carbono amorfo, donde la densidad del material no está bien definida, sino que depende del método de fabricación y varía desde  $\rho = 1.6 \text{ g}/\text{cm}^3$  hasta  $2 \text{ g}/\text{cm}^3$  [Stoner 1991].

# Apéndice B

## Resumen del programa de simulación

### Esquema general

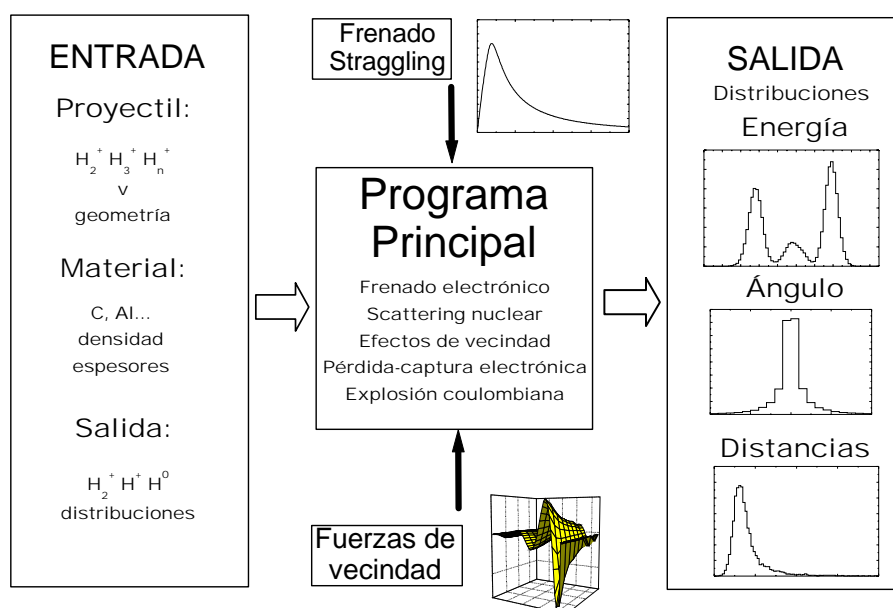


Figura B.1: Esquema general del programa de simulación.

- **ENTRADA.** La entrada de datos necesarios para efectuar la simulación se hace mediante un fichero de entrada que se comenta en el apartado siguiente (B). En este fichero se pueden encontrar las diferentes características tanto del proyectil (velocidad inicial, estado disociado-no disociado, geometría, masa y carga) como del material que forma la lámina (tipo de material, espesores de las láminas). También se da la opción de realizar la simulación con o sin algunas interacciones o efectos entre el proyectil y el material. Por último se especifica qué datos (distribuciones) de salida se le requieren.
- **PROGRAMA PRINCIPAL.** El programa principal une diversas subrutinas encargadas de calcular el tránsito de los proyectiles a través de la lámina, teniendo en cuenta la modificación del estado disociado o no disociado del proyectil. Cada subrutina se encarga de un trabajo específico, como leer el fichero de entrada, el sorteo de la geometría de la molécula, la dinámica molecular o las diferentes interacciones que sufre el proyectil. Estas subrutinas serán analizadas en el apartado de programa principal (B).
- **FRENADO Y STRAGGLING ELECTRÓNICO.** El programa principal se nutre de tablas del frenado y straggling electrónico del proyectil en función de la velocidad de éste calculadas a priori, ya que su cálculo dentro del programa ralentizaría la simulación. Estas tablas se calculan a partir de otro programa de cálculo que se describe en el apartado B de frenado, straggling y fuerzas de vecindad electrónicos.
- **FUERZAS DE VECINDAD.** El programa principal también se nutre de unas tablas sobre las fuerzas de vecindad electrónicas entre proyectiles en función de la velocidad del proyectil que ejerce la fuerza y de las posiciones relativas del proyectil que la sufre. También son calculadas a priori, ya que su cálculo dentro del programa ralentizaría mucho la simulación. Estas tablas se calculan a partir de otro programa de cálculo que se describe en el apartado B de frenado, straggling y fuerzas de vecindad electrónicas.
- **SALIDA.** La salida o los datos de salida del programa de cálculo se realizan a través de ficheros según se requieran en el fichero de entrada. Normalmente los datos de salida son histogramas que dependen del número de proyectiles lanzados (estadística). Se discuten los diferentes tipos de resultados en el último apartado de este apéndice.

## Fichero de entrada

0/1	(1=YES, 0=NO)	1 indica sí y 0 indica no en las entradas no numéricas
129	RUN	Nº de ejecución
0,3000	APPEND & NUMBER OF PROJECTILES	Añadir a un fichero anterior más historias
1.0d0	TIME FACTOR	Factor multiplicador del inverso de la velocidad
PROJECTILE		PROYECTIL
50000	NUMBER OF PROJECTILES	Nº de proyectiles del cálculo (estadística)
1000	PROJECTILE NUMBER PRINT FILE	Cada cuántos proyectiles crea los ficheros de salida
1000	PROJECTILE NUMBER PRINT SCREEN	Cada cuántos proyectiles escribe en pantalla
6.93	INITIAL VELOCITY	Velocidad inicial del proyectil (a.u.)
2	PROCESSES	Nº de estados del proyectil
1	PROCESS NUMBER	Nº del estado
0.23	LIFETIME (fs)	Vida media del estado
1	CLUSTER PARTICLES	Nº de partículas del estado
H2,2.0,1.0	PARTICLE, MASS & CHARGE	Nombre, masa <sup>1</sup> y carga (a.u.) de la partícula.
3.0,4.0,0.0	GEOMETRY	Coordenadas de la partícula (a.u.)
2	PROCESS NUMBER	Nº del estado
1e5	LIFETIME (fs)	Vida media del estado
2	CLUSTER PARTICLES	Nº de partículas del estado
H,1.0,1.0	PROJECTILE, MASS & CHARGE	Nombre, masa <sup>1</sup> y carga (a.u.) de la partícula
2.0,5.0,0.0	GEOMETRY	Coordenadas de la partícula (a.u.)
H,1.0,1.0	PARTICLE, MASS & CHARGE	Nombre, masa <sup>1</sup> y carga (a.u.) de la partícula

<sup>1</sup> En unidades de masa del protón.

4.246,5.0,0.0	GEOMETRY	Coordenadas de la partícula (a.u.)
TARGET		BLANCO
1	NUMBER OF MATERIALS	Nº de materiales
carbon	MATERIAL	Nombre del material
3	NUMBER OF DEPTHS	Nº de espesores
40.0,1	DEPTH, MATERIAL	Espesor (a.u.) y nº de material
200.0,1	DEPTH, MATERIAL	Espesor (a.u.) y nº de material
20000.0,0	DEPTH, MATERIAL	Espesor (a.u.) y nº de material
FORCES AND EFFECTS		FUERZAS Y EFECTOS
1	ELECTRONIC STOPP.	¿Incluimos poder de frenado electrónico?
1	STRAGGLING	¿Incluimos straggling electrónico?
1	WAKE	¿Incluimos las fuerzas de vecindad electrónicas?
1	COULOMB FORCES	¿Incluimos las fuerzas coulombianas?
1	NUCLEAR COLISIONS	¿Incluimos colisiones nucleares?
0, 1	ASYMPTOTIC INTERFOIL, AFTER FOILS (2 project)	¿Incluimos el método asintótico entre láminas y después de las láminas?
1,0.0,1.14	DETECTOR, POSITION & ACCEPTANCE (deg,deg)	¿Las partículas llegan a un detector?, posición (grad) y aceptación (grad) del detector
0.0,0.0	INSIDE & SURFACE NEUTRAL FRACTION	Fracción de neutros en el interior y en la superficie de la lámina
0	RECOMBINATION (H2+,H2O)	¿Incluimos la recombinación de moléculas?
OUT		SALIDA

1	VELOCITY HISTOGRAM	¿Escribe un fichero con el histograma de velocidades finales?
6.89,6.96,100	LIMITS & N° OF BOXES OF THE VELOCITIES	Límites y n° de casillas del histograma de velocidades finales
1	ANGLE HISTOGRAM	¿Escribe un fichero con el histograma de ángulos finales?
-.02,.02,100	LIMITS & N° OF BOXES OF THE ANGLES (Deg)	Límites y n° de casillas del histograma de ángulos finales
1	ENERGY-ANGLE (RING) HISTOGRAM	¿Escribe un fichero con el histograma de energía-ángulo final?
-.15,.15,100	LIMITS & N° OF BOXES THE OF RING	Límites y n° de casillas del histograma de energía-ángulo final
1	INITIAL DISTANCE-ANGLE HISTOGRAM	¿Escribe un fichero con el histograma de distancias y ángulos iniciales?
1	FINAL DISTANCES	¿Escribe un fichero con el histograma de distancias finales?
0.,6.,100	LIMITS & N° OF BOXES OF THE DISTANCES	Límites y n° de casillas del histograma de distancias finales

## Programa principal

El programa de simulación está dividido en las siguientes subrutinas principales:

- **Subroutine Readdata/Readold.** La subrutina Readdata se encarga de leer los datos del fichero de entrada mostrado en el apartado anterior. Si el fichero de entrada tiene un 1 en “append” da paso a la subrutina Readold que se encarga de leer los datos de salida de un lanzamiento anterior.

- **Subroutine Material.** Una vez leído cuál es el material del blanco, la subrutina Material inicializa todas las variables correspondientes al tipo de material. Si la simulación consta de más de un material, actualiza las variables del material cada vez que el proyectil cambia de medio.
- **Subroutine Process.** La subrutina Process inicializa y actualiza los datos correspondientes al proyectil cada vez que cambia de estado (no disociado, disociado, recombinado...).
- **Subroutine Eulergeo.** Se encarga de sortear aleatoriamente la orientación inicial de la molécula.
- **Subroutine Step3.** Es la parte dedicada a la dinámica molecular. Actualiza las posiciones y las velocidades de cada proyectil según el paso de tiempo y las fuerzas que actúan durante ese intervalo temporal.
- **Subroutine InterpSp/Interpol.** Las subrutinas InterpSp e Interpol son las encargadas de interpolar las tablas de poder de frenado y straggling, y de las fuerzas de vecindad, respectivamente. Estas tablas han sido calculadas anteriormente por los programas que veremos en el apartado siguiente.
- **Subroutine Scattering.** Como su nombre indica, calcula la desviación de la trayectoria y la pérdida de energía que sufre el proyectil al interactuar con los núcleos del material.
- **Subroutine Force.** Es el código de cálculo que sirve para sumar todas las fuerzas que sufre el proyectil. Es llamada cada paso de tiempo por la subrutina Step3.
- **Subroutine Recombination.** Se encarga de calcular la recombinación de las moléculas originales a partir de sus fragmentos justo en la superficie de salida de la lámina. Sólo sirve para la molécula de  $\text{H}_2^+$  o  $\text{H}_2$ .
- **Subroutine Vacio.** Es el método asintótico de la explosión coulombiana en el vacío para dos átomos, explicado en el apartado 2.2.
- **Subroutine Printfile.** Es la subrutina que se encarga de crear los ficheros de salida del programa. Estos ficheros de salida son normalmente histogramas.

## Frenado, straggling y fuerzas de vecindad electrónicas

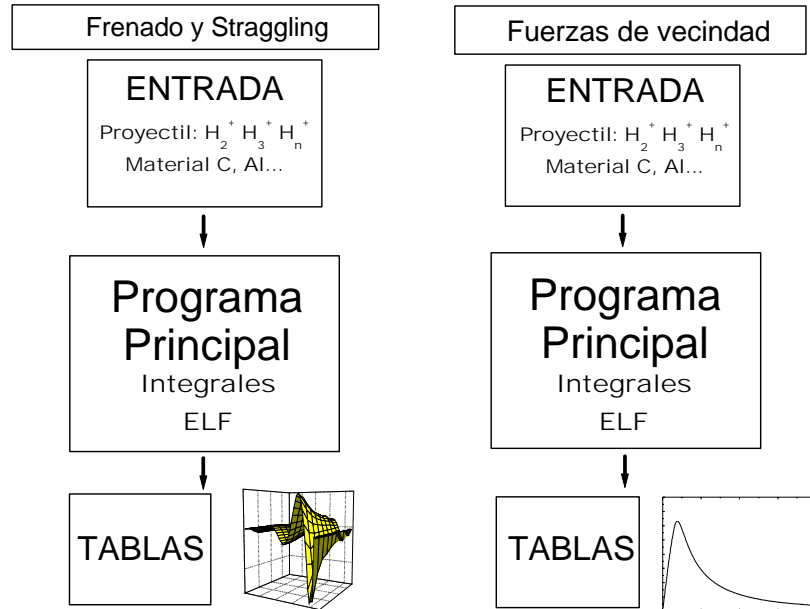


Figura B.2: Esquema general de los programas para el cálculo de las tablas de frenado, straggling y fuerzas de vecindad electrónicas.

- **ENTRADA.** En los ficheros de entrada a los programas de cálculo de las tablas de frenado y straggling, y de las tablas de las fuerzas de vecindad electrónicas, se dan la velocidad del proyectil y las características de la función de pérdida energética del material (capítulo 1). La magnitud de las tablas depende del rango de velocidades en el caso del frenado y del straggling, y del rango de distancias relativas en el caso de las fuerzas de vecindad.
- **PROGRAMA.** El programa se encarga de hacer las integrales especificadas en las ecuaciones (1.1) y (1.3) para el frenado y el straggling, y las ecuaciones (1.11) y (1.12) para las fuerzas de vecindad. Para ello necesita la velocidad del proyectil y las características de la función de pérdida energética del blanco.
- **TABLAS.** La salida o las tablas del frenado, straggling y fuerzas de vecindad electrónicas tienen un formato característico para que puedan ser leídas por el



programa de simulación principal. Las tablas del frenado y el straggling están en función de la velocidad del proyectil, mientras que las de las fuerzas de vecindad están en función de las distancias relativas para una sola velocidad del proyectil.

## Salida

- HISTOGRAMAS. A partir de la subrutina Printfile del programa principal se escriben los resultados obtenidos por éste en ficheros de salida, según lo especificado en el fichero de entrada. El histograma de velocidades finales nos da una distribución de la velocidad de los diferentes proyectiles a la salida de las láminas o a la llegada a un detector simulado. El histograma de ángulos nos dice el ángulo polar entre la trayectoria final e inicial de los proyectiles cuando salen de la láminas o a la llegada a un detector simulado. El histograma energía-ángulo nos da la distribución de ángulo para cada energía de los proyectiles, el resultado tiene forma de anillo o corral. Por último, están las distribuciones de distancias relativas entre los diferentes proyectiles que forman un agregado disociado. Se puede implementar en la subrutina Printfile cualquier otro tipo de histograma que nos sirva para nuestros cálculos.

- OTRAS. Aparte de los histogramas que nos dicen cuáles son las distintas distribuciones de lo que medimos, podemos obtener del programa otro tipo de resultados que no se basan en la estadística, como la interpolación de fuerzas de vecindad para una velocidad distinta a la que tenemos en las tablas, u otros cálculos que son tediosos si se realizan manualmente.

## Apéndice C

### Distancias internucleares iniciales del ion $\text{H}_2^+$

El ion  $\text{H}_2^+$  está compuesto por dos protones separados por una distancia  $R$  y por un electrón (figura C.1). La distancia media entre estos dos protones depende de cuál sea el nivel de vibración de la molécula, el cual está relacionado tanto con el proceso de creación como con el proceso de aceleración de la molécula de  $\text{H}_2^+$ .

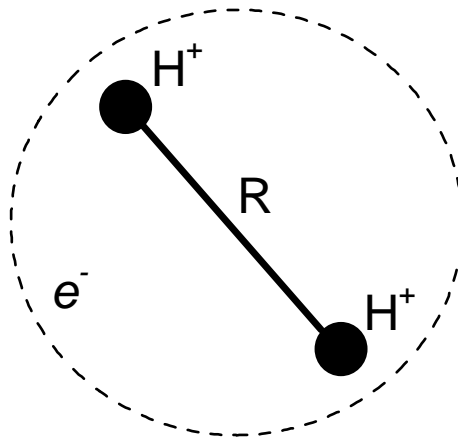


Figura C.1: Dibujo esquemático de las posiciones relativas de los dos protones y el electrón que forman el ion molecular  $\text{H}_2^+$ .

Este apéndice describe un acercamiento teórico a la geometría inicial de la molécula de  $\text{H}_2^+$ , basado en los principios de la química cuántica sobre las propiedades estáticas (sin traslación del centro de masa) de las moléculas. El estudio de la geometría de la molécula implica tanto a los núcleos como a los electrones, pero el hecho que los electrones tengan unas energías de excitación más grandes que las de vibración nuclear, una masa mucho más pequeña y una posición más deslocalizada dentro de la molécula, hace que cuando nos refiramos a la geometría nos refiramos a las posiciones de los núcleos. Aunque más localizados, el conjunto de núcleos puede vibrar y rotar alrededor de su posición de equilibrio; es por eso que definimos una densidad de probabilidad de las distancias internucleares medias.

Para llegar a obtener las densidades de probabilidad de las distancias internucleares necesitamos partir de una ecuación de Schrödinger donde en el hamiltoniano aparezca, como mínimo, el potencial electrostático entre las partículas. Como los núcleos se mueven mucho más despacio que los electrones, podemos aplicar la aproximación de Born-Oppenheimer (BO) [1927] y obtener una ecuación de Schrödinger para los núcleos y otra para los electrones. El tratamiento convencional de la ecuación de Schrödinger nuclear es considerar por un lado el movimiento del centro de masas y por otro los movimientos de rotación y de vibración.

Para el caso de una molécula diatómica, como la molécula de  $\text{H}_2^+$ , una vez utilizada la aproximación BO, la distancia internuclear  $R$  es el único parámetro del hamiltoniano electrónico [Atkins 1989]. Excluyendo la traslación del centro de masas, ya que estudiamos las propiedades de la molécula estática, podemos escribir la ecuación de Schrödinger del sistema formado por dos protones en la forma:

$$\left[ \frac{P_R^2}{2\mu} + U(R) + \frac{J^2}{2\mu R^2} \right] |\psi_n\rangle = E_n |\psi_n\rangle, \quad (\text{C.1})$$

donde  $\mu$  es la masa reducida,  $P_R$  es el operador momento,  $U(R)$  la energía potencial para el nivel fundamental electrónico,  $J$  el operador momento angular y  $E_n$  la energía de los diferentes estados propios  $|\psi_n\rangle$ . A su vez  $|\psi_n\rangle$  se puede escribir como producto de los estados propios vibracionales  $|\Psi_v\rangle$  y los estados propios del momento angular, conocidos como armónicos esféricos,  $|\Psi_J\rangle$  tal que:

$$|\psi_n\rangle = |\Psi_v\rangle |\Psi_J\rangle. \quad (\text{C.2})$$

Entonces la ecuación (C.1) queda de la forma [Pauling y Wilson 1963]:

$$\left[ -\frac{\hbar^2}{2\mu R^2} \frac{d}{dR} \left( R^2 \frac{d}{dR} \right) + U(R) + \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2\mu R^2} \right] |\Psi_v\rangle = E_v |\Psi_v\rangle, \quad (C.3)$$

donde aparece un potencial efectivo:

$$U_{\text{eff}}(R) = U(R) + \frac{\hbar^2 J(J+1)}{2\mu R^2}, \quad (C.4)$$

y donde cada estado propio vibracional tiene un número  $J$  de momento angular, por lo que estará degenerado  $2J + 1$  veces.

## Principio de Franck-Condon

En este apartado vamos a calcular la probabilidad de distancias internucleares medias  $R$  a partir del principio de Franck-Condon [Pauling y Wilson 1963, Atkins 1989], el cual permite calcular la población de los niveles vibracionales que se han excitado en la molécula de  $\text{H}_2^+$ , si se forman a partir de la ionización de la molécula  $\text{H}_2$ .

La molécula de  $\text{H}_2$  se encuentra en un principio en su nivel vibracional fundamental, pero al ionizarse pasan a poblarse niveles vibracionales excitados de la molécula de  $\text{H}_2^+$ . La velocidad de la transición es más rápida que las velocidades de vibración y rotación, haciendo que la distancia internuclear que tiene originariamente la molécula de  $\text{H}_2$  en el nivel fundamental permanezca inalterada al ionizarse. Esto se conoce en química cuántica como transición vertical. La distancia internuclear que finalmente define la geometría de la molécula depende del nivel vibracional excitado en que quede la molécula de  $\text{H}_2^+$ .

Para obtener las probabilidades de ocupación de los niveles vibracionales del  $\text{H}_2^+$  primero necesitamos calcular cuáles son estos niveles. La energía y los estados propios de estos niveles vibracionales los obtenemos mediante la ecuación (C.3) y las curvas de la energía potencial para el nivel fundamental electrónico de las moléculas de  $\text{H}_2$  y  $\text{H}_2^+$ . Las curvas de potencial del  $\text{H}_2$  y  $\text{H}_2^+$  las obtenemos a partir del potencial [Aguado *et al.* 2000]:

$$U(R) = U_{\text{short}}(R) + U_{\text{long}}(R), \quad (C.5)$$

donde  $U_{\text{short}}(R)$  y  $U_{\text{long}}(R)$  son de la forma:

$$U_{\text{short}}(R) = C_0 \exp(-\alpha R)/R, \quad (C.6)$$

$$U_{\text{long}}(R) = \sum_i^n C_i R \exp(-\beta R), \quad (\text{C.7})$$

para  $\alpha = 1.6759$  a.u.,  $\beta = 0.9111$  a.u. y usando los valores  $C_i$  de la tabla I y II de Aguado *et al.* [2000]. La resolución de la ecuación (C.3) la hacemos a partir de un código de cálculo variacional desarrollado por Bastida [2001]. Para un primer análisis haremos los cálculos con  $J = 0$ ; después compararemos los resultados para otros valores de  $J$ .

Los autovalores de la energía vibracional,  $E_v$ , de la molécula de  $\text{H}_2^+$  obtenidos a partir del código de cálculo variacional para  $J = 0$  son 20. Caracterizaremos estos niveles energéticos vibracionales según su subíndice  $v$ , donde  $v = 0$  indica el nivel fundamental y desde  $v = 1$  a  $v = 19$  indican los niveles excitados del  $\text{H}_2^+$ . Igualmente, calcularemos el nivel energético fundamental  $v = 0$  para la molécula de  $\text{H}_2$ . Los diferentes valores de los niveles energéticos se pueden ver junto a las curvas de potencial utilizadas para su cálculo en la figura C.2.

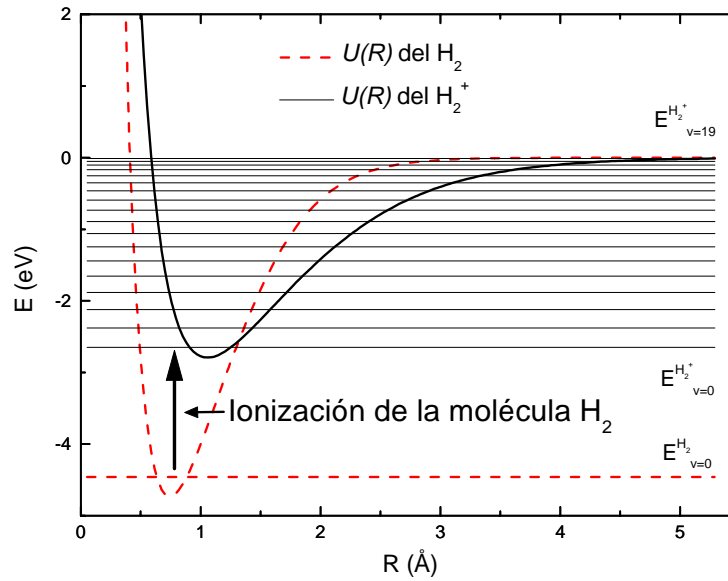


Figura C.2: Autovalores de la energía,  $E_v$ , para  $J = 0$  de los niveles vibracionales comprendidos entre  $v = 0$  y  $v = 19$  del  $\text{H}_2^+$ , y del nivel fundamental  $v = 0$  del  $\text{H}_2$ . También se han representado las curvas de potencial utilizadas para su cálculo [Aguado *et al.* 2000].

También podemos calcular las autofunciones, o funciones de onda asociadas a cada nivel de energía de las moléculas  $\text{H}_2$  y  $\text{H}_2^+$ , como combinación lineal de un número finito de las autofunciones de onda  $\Psi_i$  de la partícula en una caja de tamaño  $L$ , es decir:

$$\Psi_{v=0}^{\text{H}_2}(R) = \sum_{i=0}^n C_{iv} \Psi_i(R), \quad (\text{C.8})$$

$$\Psi_v^{\text{H}_2^+}(R) = \sum_{i=0}^n C'_{iv} \Psi_i(R), \quad (\text{C.9})$$

donde

$$\Psi_i(R) = \sqrt{\frac{2}{L}} \sin\left(\frac{n\pi R}{L}\right). \quad (\text{C.10})$$

El número  $n$  de funciones de onda  $\Psi_i(R)$  que utilizemos dependerá de la rapidez con que tiendan a estabilizarse en el cálculo los coeficientes  $C_{iv}$  y los autovalores de energía  $E_v$  en el código variacional. En nuestro caso fue necesario llegar hasta  $n = 200$ .

A partir de los coeficientes  $C_{iv}$  calculados podemos obtener las autofunciones vibracionales y las densidades de probabilidad respectivas de las moléculas  $\text{H}_2$  y  $\text{H}_2^+$ . En la figura C.3 se dibujan las autofunciones (línea continua) y sus correspondientes densidades de probabilidad (línea discontinua) para  $v = 0$  del  $\text{H}_2$ , y para  $v = 0$  y  $v = 10$  del  $\text{H}_2^+$ .

Como suponemos que la molécula de  $\text{H}_2$  está en su estado vibracional fundamental antes de excitarse, calcularemos la población de los niveles excitados de la molécula de  $\text{H}_2^+$  haciendo:

$$F_v = \langle \Psi_{v=0}^{\text{H}_2}(R) | \Psi_v^{\text{H}_2^+}(R) \rangle, \quad (\text{C.11})$$

donde

$$\Psi_{v=0}^{\text{H}_2}(R) = \sum_{v=0}^{v=19} F_v \Psi_v^{\text{H}_2^+}(R). \quad (\text{C.12})$$

$F_v$  son los coeficientes de solapamiento de Franck-Condon. Si elevamos al cuadrado estos coeficientes,  $F_v$ , de Franck-Condon obtendremos la población de los estados vibracionales del  $\text{H}_2^+$  a partir del estado vibracional fundamental del  $\text{H}_2$ .

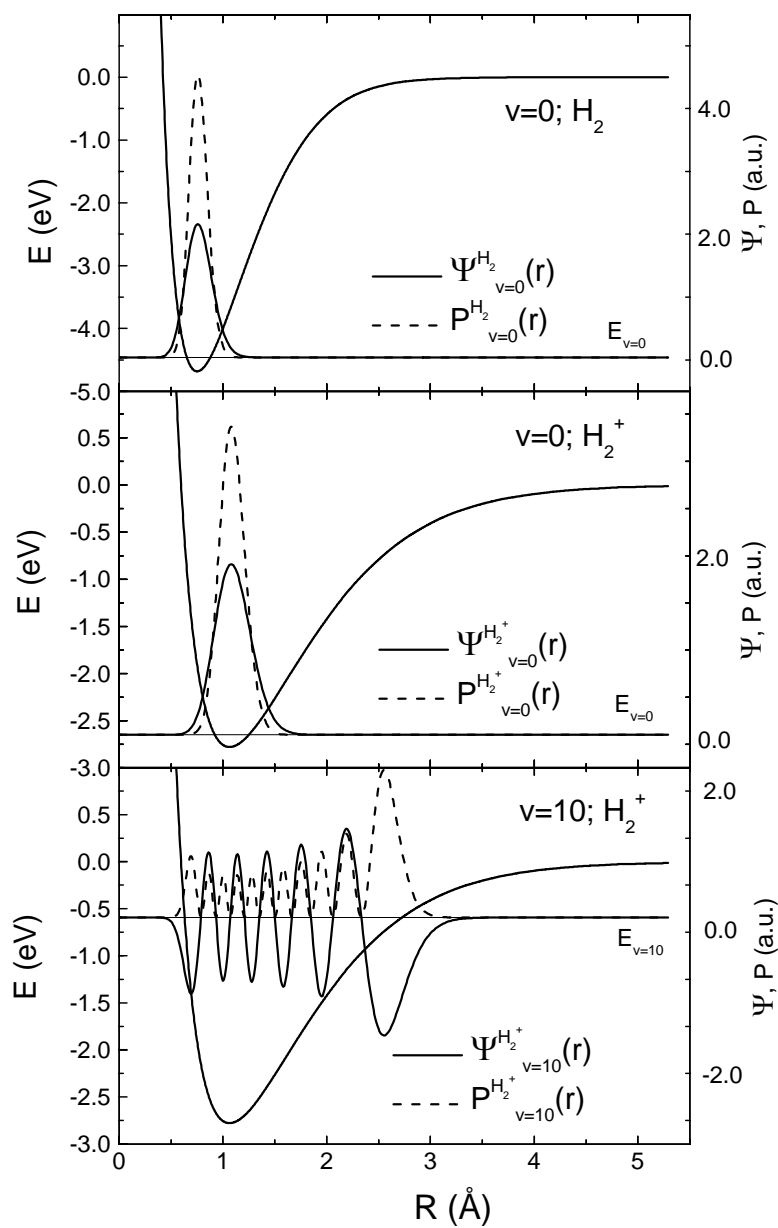


Figura C.3: Autofunciones (línea continua) y su correspondientes densidades de probabilidad (línea discontinua) para  $v = 0$  del  $\text{H}_2$  y para  $v = 0$  y  $v = 10$  del  $\text{H}_2^+$ . También se han representado las curvas de potencial utilizadas para su cálculo [Aguado *et al.* 2000].

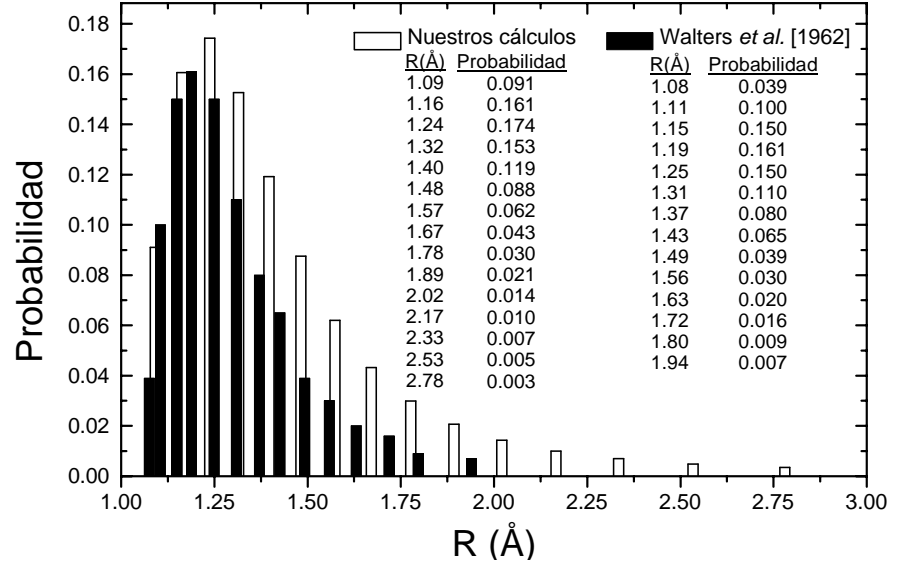


Figura C.4: Probabilidad de la población de los estados vibracionales del  $\text{H}_2^+$  en función de la distancia media de cada estado. Comparamos nuestros resultados (histogramas blancos) con los obtenidos por Walters *et al.* [1962] (histogramas negros).

Finalmente podemos calcular la distancia media  $\bar{R}_v$  de cada estado vibracional del  $\text{H}_2^+$  a partir de:

$$\bar{R}_v = \langle \Psi_v^{\text{H}_2^+}(R) | R | \Psi_v^{\text{H}_2^+}(R) \rangle. \quad (\text{C.13})$$

En la figura C.4 representamos la probabilidad de población de los estados vibracionales del  $\text{H}_2^+$  en función de la distancia media de cada estado y comparamos nuestros resultados con los obtenidos por Walters *et al.* [1962].

Vemos que las dos distribuciones de distancias internucleares tienen la misma forma, pero nuestra distribución es un poco más ancha y contiene una probabilidad de población más alta para las distancias medias de los estados vibracionales más excitados. De todos modos, no se obtienen diferencias apreciables al introducir una u otra distribución en el código de simulación con el cual estudiamos la interacción de iones  $\text{H}_2^+$  con la materia; como sabemos cómo se ha realizado y porque suponemos que el cálculo con ordenadores más potentes lleva a un resultado más fiable, utilizaremos nuestra propia distribución en el código de simulación. Además, tenemos que decir a favor de



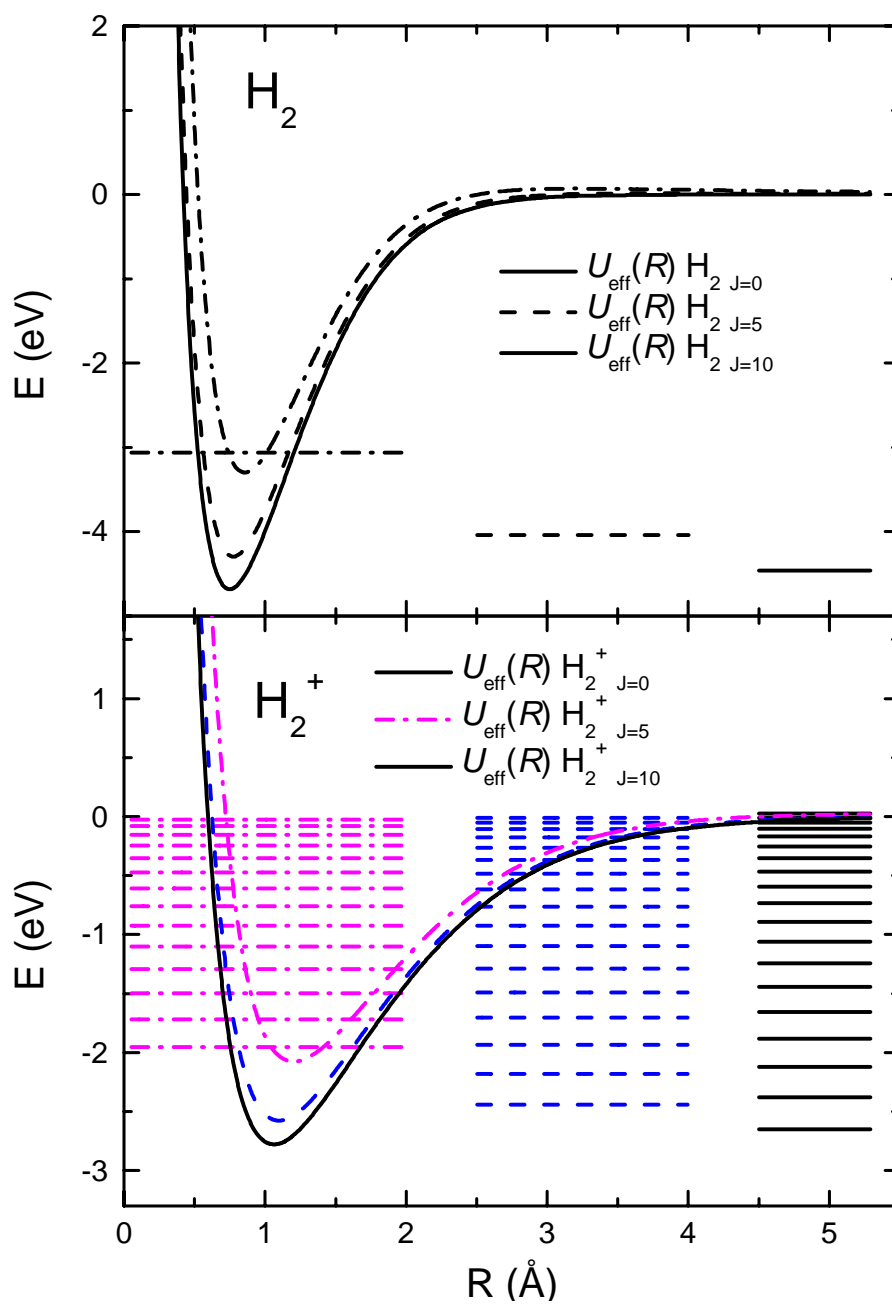


Figura C.5: Potenciales efectivos de  $\text{H}_2$  y  $\text{H}_2^+$ , y autovalores de energía vibracional  $E_v$  para valores de  $J = 0, 5$  y  $10$ .

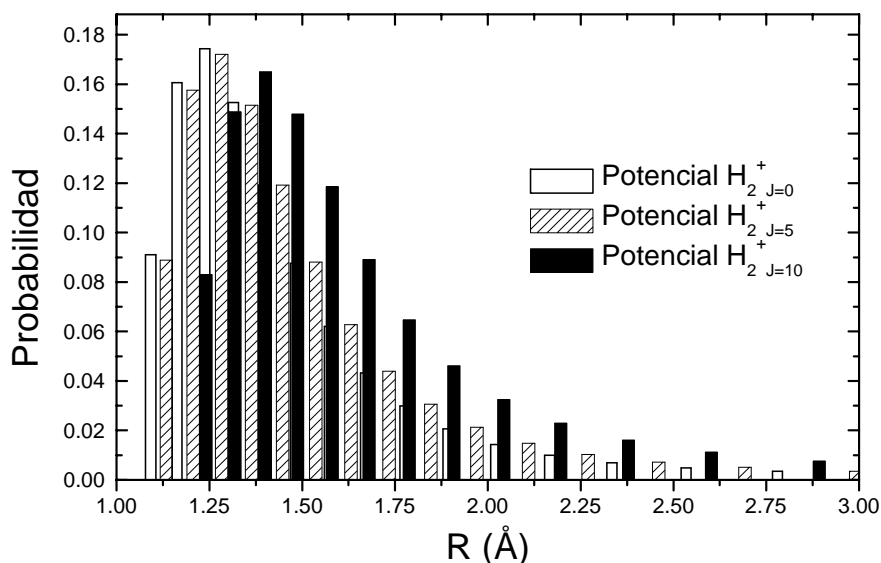


Figura C.6: Población de estados vibracionales del  $H_2^+$  en función de la posición media de cada estado. Comparamos los resultados para  $J = 0$ ,  $J = 5$  y  $J = 10$ .

nuestro cálculo que hemos utilizado un ajuste de las curvas de potencial de  $H_2$  y  $H_2^+$  muy reciente [Aguado *et al.* 2000].

Ahora vamos a hacer los mismos cálculos anteriores pero para los casos  $J = 5$  y  $J = 10$ . Lo primero que observamos en la figura C.5 es que el potencial efectivo de  $H_2$  y  $H_2^+$  varía notablemente para estos valores de  $J$ . Los mínimos de potencial aumentan, los autovalores de energía que hallamos para estos potenciales son mayores y el número de estados ligados es menor a medida que aumentamos el valor de  $J$ . A la vez que aumentan los mínimos de potencial y los valores de la energía para los niveles, aumenta la distancia media de cada estado vibracional.

Por este motivo la distribución de la distancia internuclear  $R$  basada en la población de los diferentes estados vibracionales en función de la distancia media de cada estado, tendrá un valor medio de  $R$  mayor que para el caso de  $J$  menores, tal como puede apreciarse en la figura C.6.

Esto nos viene a decir que es importante tener en cuenta cuál es el estado de rotación inicial de la molécula ya que ensancha la distribución de distancias iniciales. No sólo eso, este efecto nos ha hecho pensar en la importancia de considerar el potencial efectivo a la hora de estudiar la recombinación de la

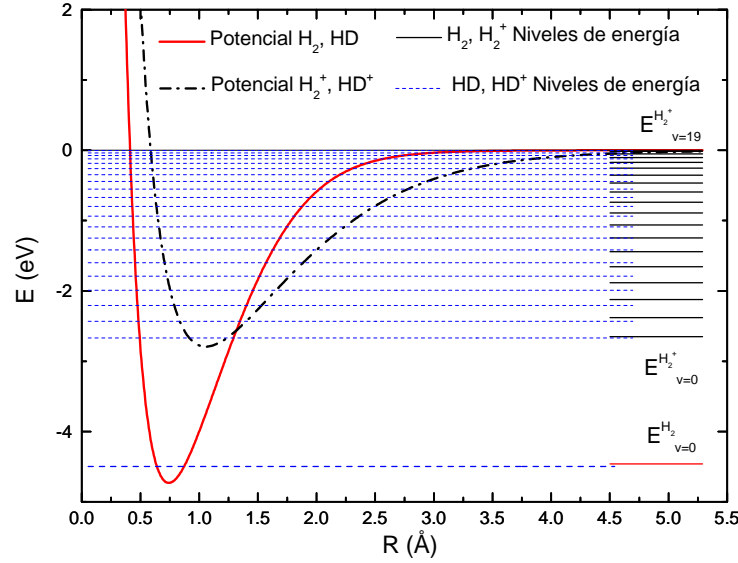


Figura C.7: Autovalores de la energía,  $E_v$ , para  $J = 0$  de los niveles vibracionales desde  $v = 0$  a  $v = 19$  del  $\text{H}_2^+$  y del  $\text{HD}^+$ , y del nivel fundamental  $v = 0$  del  $\text{H}_2$  y del  $\text{HD}$ . Las curvas de potencial son las mismas para el  $\text{H}_2$  y  $\text{HD}$ , y para el  $\text{H}_2^+$  y el  $\text{HD}^+$ , respectivamente.

molécula de  $\text{H}_2^+$  en la sección 3.4.

Para finalizar, vamos a analizar cómo estos resultados dependen de la masa reducida  $\mu$  de los dos núcleos que forman la molécula. Para ello vamos a estudiar el caso de la molécula  $\text{HD}^+$ , cuyo potencial electrónico en el estado fundamental es el mismo que para la molécula  $\text{H}_2^+$ . A la hora de calcular los autovalores de energía vemos que la masa reducida de la ecuación (C.1) es diferente; para la molécula de  $\text{H}_2^+$  era  $\mu_{\text{H}_2^+} = M/2$  y para el  $\text{HD}^+$  es  $\mu_{\text{HD}^+} = 2M/3$ , donde  $M$  es la masa del protón. El cálculo de los autovalores de energía del  $\text{HD}^+$  nos indicará cuál es el efecto de aumentar la masa reducida en la ecuación (C.1).

En la figura C.7 vemos que aparecen unos autovalores de energía más pequeños que los obtenidos anteriormente para el  $\text{H}_2^+$ . La razón es que si escribimos la energía de los niveles como:

$$E_\mu = -\frac{1}{2} \frac{Z^2 \mu e^4}{n^2 \hbar^2}. \quad (\text{C.14})$$

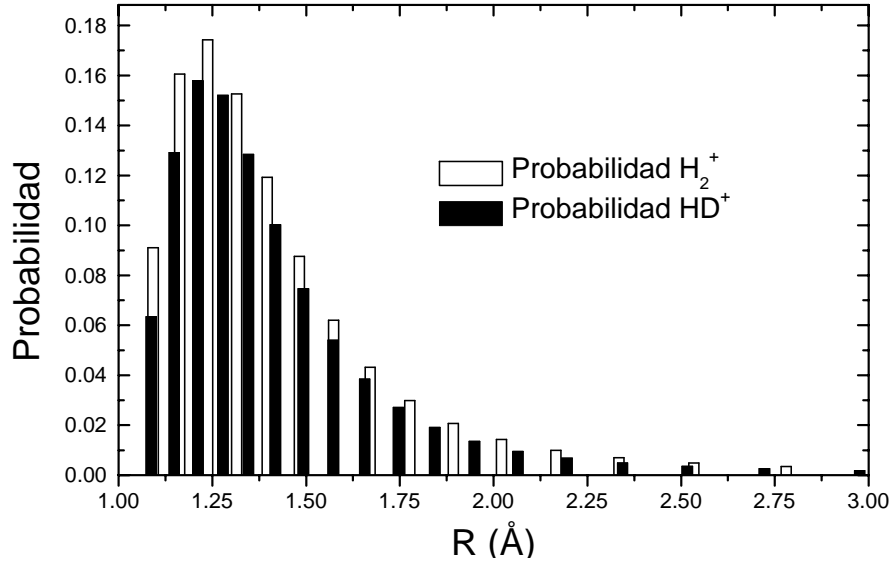


Figura C.8: Población de estados vibracionales del  $\text{H}_2^+$  y del  $\text{HD}^+$  en función de la distancia media de cada estado, para  $J = 0$ .

entonces la relación entre las energías de los niveles vibracionales de las moléculas  $\text{HD}^+$  y  $\text{H}_2^+$  es:

$$E_{\mu_{\text{HD}^+}} = E_{\mu_{\text{H}_2^+}} \frac{\mu_{\text{HD}^+}}{\mu_{\text{H}_2^+}}. \quad (\text{C.15})$$

y como  $\mu_{\text{HD}^+} > \mu_{\text{H}_2^+}$  la escala energética se dilata. Es decir el sistema se hace más ligado, efecto que se conoce en física atómica como desplazamiento de masa de los niveles energéticos.

Por último, calcularemos las distribuciones de la distancia internuclear  $R$  basándonos en la población de los diferentes estados vibracionales en función de la distancia media de cada estado. Como los niveles energéticos del  $\text{HD}^+$  son menores que los del  $\text{H}_2^+$ , la distancia media de los estados vibracionales será también menor.

La figura C.8 compara las distribuciones de la distancia internuclear para el  $\text{HD}^+$  y el  $\text{H}_2^+$ . Vemos que las dos distribuciones tienen la misma forma y casi el mismo ancho, pero la distribución de la molécula de  $\text{H}_2^+$  es un poco más alta. En esta memoria sólo nos interesa la distribución de distancias iniciales de la molécula de  $\text{H}_2^+$ , pero este último análisis nos servirá para estudiar en un

futuro las distribuciones de distancias iniciales para otros iones moleculares diatómicos más masivos, que se produzcan experimentalmente a partir de la ionización de la molécula correspondiente.

# Apéndice D

## Convolución

Los datos que se registran en la mayoría de experimentos físicos están sujetos a los efectos de distorsión introducidos por las condiciones en que se prepara la experiencia (aparatos de medida, caracterización de las muestras, etc). Normalmente, en los cálculos teóricos se obtiene una magnitud física en función de una variable independiente,  $h(x)$ ; donde  $h(x)$  representa la función ideal, es decir la función no distorsionada.

Si el experimento en cuestión tiene una distorsión finita, representada por la función de distorsión de la medida,  $g(x)$ , que puede ser conocida a partir del tipo de experiencia a analizar o por consideraciones teóricas, la relación existente entre la magnitud registrada por el aparato de medida,  $y(x)$ , y las funciones  $h(x)$  y  $g(x)$ , está dada por la siguiente integral de convolución

$$y(x) = \int_a^\infty dt h(t) g(x-t) = \int_a^\infty dt h(t-x) g(t)$$

donde  $a = 0$  o  $a \rightarrow -\infty$ , dependiendo del rango de variación de las variables a medir.

En el caso de un experimento ideal, sin distorsión en las medidas,  $g(x)$  está representada por la función delta, y la función observada,  $y(x)$ , coincide con la función verdadera,  $h(x)$ ; sin embargo, en un experimento real  $g(x)$  es usualmente una función (una gaussiana, una lorentziana, etc.). Sabiendo esto, una forma de hallar la función de distorsión de la medida,  $g(x)$ , es integrando con una función prueba con ciertos parámetros libres y hallando estos parámetros a partir del ajuste de  $y(x)$  a la función experimental.

Así pues, si disponemos de una curva teórica y queremos obtener la correspondiente curva experimental, podemos convolucionar la curva teórica con

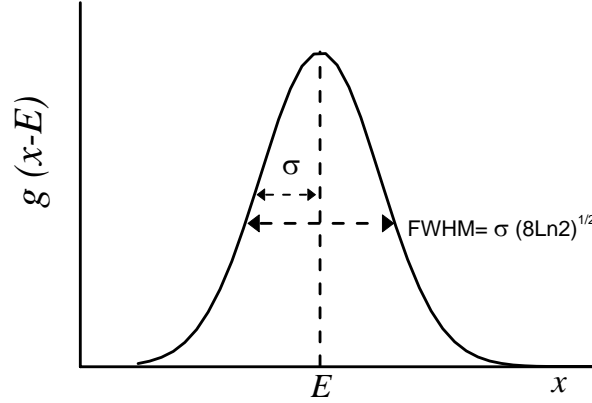


Figura D.1: Función de distribución gaussiana centrada en  $E$  y con una desviación típica,  $\sigma$ . Se indica la relación entre  $\sigma$  y el ancho total a mitad de altura (FWHM).

una función de distorsión apropiada a las características del experimento.

Para el caso concreto de las distribuciones de energía sabemos que la curva de distorsión experimental es una gaussiana [Denton *et al.* 2002a], por lo que tendremos que convolucionar la función teórica correspondiente empleando una gaussiana (figura D.1), centrada en el valor del punto teórico energético  $E$  y con una desviación típica,  $\sigma$ , relacionada con las características del experimento,

$$g(x - E) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{x - E}{\sigma} \right)^2 \right],$$

y con una varianza,  $\sigma^2$ , igual a la suma de  $n$  varianzas de cada distorsión parcial que se da en el experimento,  $\sigma_i^2$ :

$$\sigma^2 = \sum_i^n \sigma_i^2.$$

Esto es así porque la convolución de dos distribuciones normales con valor medio igual a cero y desviaciones típicas  $\sigma_1$  y  $\sigma_2$ , respectivamente, es una distribución normal con valor medio igual a cero y con una desviación típica  $\sigma = (\sigma_1^2 + \sigma_2^2)^{1/2}$ .

En nuestro caso las distorsiones parciales más importantes que influyen en las distribuciones de energía son la resolución energética del detector y la

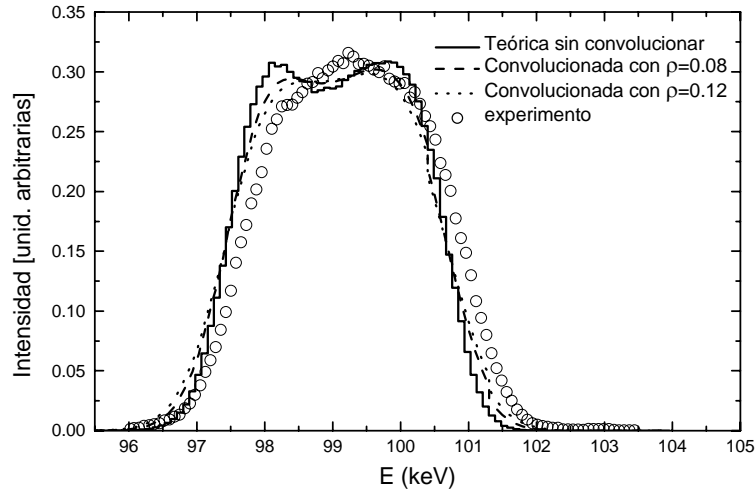


Figura D.2: Distribuciones de pérdida de energía de protones disociados de la molécula de  $H_2^+$  que incide con una velocidad de 2.02 a.u. (101.8 keV/amu) sobre una lámina de aluminio de 359 a.u. de espesor. Se presentan las curvas: teórica, teórica convolucionada (usando  $\rho = 0.08$  y  $\rho = 0.12$ ) y experimental.

rugosidad de la lámina, definidas por gaussianas centradas en el valor teórico de la energía  $E$  y con unas desviaciones típicas  $\sigma_{E_R} = E_R \cdot E / \sqrt{8 \ln 2}$  y  $\sigma_\rho = \rho \cdot (E_0 - E)$ , respectivamente.  $E_R$  es la resolución energética del aparato detector,  $\rho$  es el coeficiente de rugosidad de la lámina,  $E$  es el valor de energía del punto teórico y  $E_0$  es la energía inicial del haz. La resolución energética del detector normalmente viene dada en % de la energía detectada, por eso lo multiplicamos el valor de  $E_R$  por el valor de la energía teórica  $E$ , y como FWHM de la energía detectada, por eso lo dividimos entre  $\sqrt{8 \ln 2}$ .

A continuación presentamos la convolución de una curva teórica calculada con nuestro programa de simulación. Se trata del caso de la distribución de pérdida de energía de protones disociados de la molécula de  $H_2^+$  que incide con una velocidad de 2.02 a.u. (101.8 keV/amu) sobre una lámina de aluminio de 359 a.u. de espesor, correspondiente a la figura 3.25 del apartado 3.6.

En este apartado se nos dice que la resolución energética del detector experimental es  $E_R = 0.003$  y el coeficiente de rugosidad de la lámina es  $\rho = 0.12$ , por lo que tenemos completamente definida la desviación típica  $\sigma$  necesaria para realizar la convolución de los datos teóricos. El resultado se puede ver en la figura D.2; en esta figura también estudiamos cuál es el



efecto de variar el coeficiente de rugosidad, que es el predominante en este caso ( $\sigma_{E_R} < \sigma_\rho$ , ya que  $(E_0 - E) \simeq 3$  keV). A medida que aumentamos el valor del coeficiente de rugosidad van desapareciendo los dos picos de la curva teórica para irse pareciendo más a la forma suavizada de la curva experimental.

# Apéndice E

## Artículos



Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 193 (2002) 198–203



www.elsevier.com/locate/nimb

### Effect of the neutral charge fraction in the Coulomb explosion of $H_2^+$ ions through aluminum foils

Cristian D. Denton <sup>a,\*</sup>, Isabel Abril <sup>b</sup>, Manuel D. Barriga-Carrasco <sup>c</sup>,  
Rafael Garcia-Molina <sup>c</sup>, Gerardo H. Lantschner <sup>d</sup>, Juan C. Eckardt <sup>d</sup>,  
Néstor R. Arista <sup>d</sup>

<sup>a</sup> Departamento de Física, Universidad Técnica Federico Santa María, Casilla 1109, Valparaíso, Chile

<sup>b</sup> Departament de Física Aplicada, Universitat d'Alacant, Apartat 99, E-03080 Alacant, Spain

<sup>c</sup> Departamento de Física, Universidad de Murcia, Apartado 4021, E-30080 Murcia, Spain

<sup>d</sup> Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche, R4-8400 Bariloche, Argentina

#### Abstract

The Coulomb explosion of the proton fragments dissociated from  $H_2^+$  molecules moving through thin aluminum foils has been studied by means of their energy spectra, measured in the forward direction, and by computer simulations. The covered energy range goes from 25 to 100 keV/u. Estimations of the neutral charge fraction of the fragments inside the foil have been obtained by comparison of the experimental energy spectra with the computer simulations. © 2002 Elsevier Science B.V. All rights reserved.

#### 1. Introduction

The study of the interaction of molecular ions and clusters with matter has been an important subject of research in the last 25 years. Since the pioneering work of Brandt and coworkers [1] where the vicinage effects in the energy loss of the dissociated molecular ions through thin foils were first analyzed, a lot of work has been done in this and related topics, both theoretically and experimentally (see Ref. [2] for a complete list of references). In particular, the study of the interaction of  $H_2^+$  molecules with matter has proven to be spe-

cially useful because the simplicity of the molecule allows to analyze the vicinage effects and test the theories [1–13]. In a further pioneering work Laubert and Chen [14] obtained information on the charge state fractions of hydrogen ions moving inside a solid from the analysis of the energy spectra produced by  $H_2^+$  fragments. Most of the previous studies analyze the high velocity regime ( $v > v_0$ ) where the theories can be applied successfully (here  $v_0 = 1$  a.u. is the Bohr velocity). Nevertheless few papers were devoted to the study of the intermediate velocity regime ( $v \sim v_0$ ), which is specially challenging, in particular because there is a significant change in the screening conditions, as well as a strong variation of the projectile charge states [15].

In this paper we present energy-distribution measurements of the proton fragments dissociated

\* Corresponding author.  
E-mail address: cdenton@fs.utfsm.cl (C.D. Denton).

from the  $H_2^+$  molecule in thin aluminum foils and emerging in the forward direction, in the intermediate velocity regime (24–102 keV/u). In addition, we perform a computer simulation study containing the basic interactions of the ions within the solid (Coulomb repulsion between the ionized fragments, electronic stopping forces, wake forces and elastic scattering with the atomic cores) and charge exchange process. By changing the value of the charge state fractions used in these simulations, and looking for the best fit with the experimental spectra, we have been able to obtain values of the charge fractions for various ion energies.

In Section 2 we describe the experimental procedure and in Section 3 we introduce the computational method used in the simulation. The main results are shown in Section 4 and the conclusions are presented in Section 5.

## 2. Experiment

The  $H_2^+$  and  $H^+$  projectiles were generated by electrostatic acceleration to 25–100 keV/u and magnetic mass selection of ions produced in a RF source. A target chamber with foils removable in vacuo from the beam path followed a collimation by two 1-mm diameter diaphragms separated by 109.5 cm. The energy spectra were determined by means of an electrostatic energy analyzer placed in the forward direction with an angular acceptance of  $0.05^\circ$ . The overall energy resolution, including the effect of the energy spread of the beam was 0.3%. The projectiles were detected by a discrete dynode electron multiplier followed by standard pulse counting electronics. The targets were self supporting 2 mm diameter, 19 nm thick aluminum foils, prepared under clean vacuum conditions [16]. The target thickness was determined by fitting the proton energy loss measured at 100 keV with the Andersen and Ziegler stopping power tables [17]. The thickness homogeneity was determined following a beam technique [18] resulting in a mean square deviation of  $\leq 12\%$ . Foil thickening by beam bombardment [19] was held with negligible limits using low beam doses and was checked

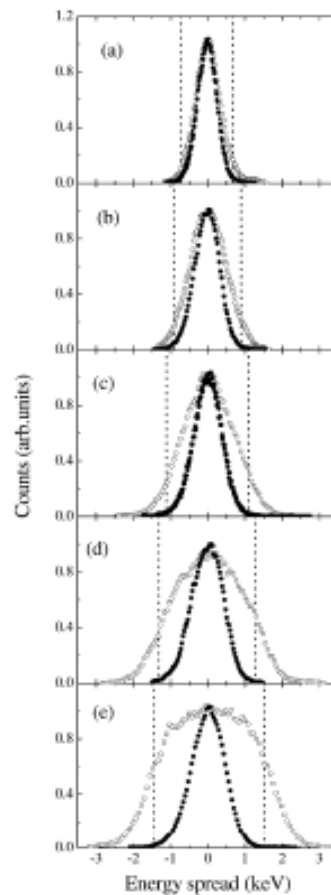


Fig. 1. Experimental energy distributions of protons dissociated from  $H_2^+$  traversing a 19 nm thick aluminum foil, and exiting in the forward direction (empty circles). The incident projectile energies,  $E_0$ , are (a) 23.8 keV/u, (b) 39.2 keV/u, (c) 56.7 keV/u, (d) 78.8 keV/u and (e) 101.8 keV/u. The center of each spectrum corresponds to the following energies: (a) 21.8 keV, (b) 36.8 keV, (c) 54.1 keV, (d) 76.1 keV and (e) 99.2 keV. The experimental energy distributions for proton beams incident with the same energies per nucleon are also presented (full circles). The vertical dashed lines represent the energies after a pure Coulomb explosion in vacuum for a  $H_2^+$  molecule.

by comparison of the energy loss before and after the measurements series.

Fig. 1 shows energy-distribution measurements for charged dissociation fragments emerging from aluminum foils in the forward direction arising from  $H_2^+$  projectiles, for different incident energies, centered at the mean energy of the spectra. Additionally we also show the measured energy distributions corresponding to  $H^+$  projectiles with the same incident energies. Comparison of the different energy spectra, empty circles for  $H_2^+$  or full circles for  $H^+$  projectiles, shows changes in the molecular effects with the beam energy.

For the sake of comparison, we indicate in Fig. 1 with vertical dashed lines the energy spread corresponding to a hypothetical pure Coulomb explosion in vacuum for a  $H_2^+$  molecule with an initial internuclear separation of 1.29 Å [1]; in this way, we can compare the widths of the fragment energy spectra with those of the pure Coulomb case. The figure indicates a transition from an almost complete screening at the lowest projectile energy to a nearly unscreened Coulomb explosion at the highest energy value.

### 3. Computer simulation

When a  $H_2^+$  ion penetrates into a solid it loses its binding electron in the first atomic layers [4] and then the fragments move as two correlated projectiles. These projectiles may capture or lose electrons along their path and so they can have different charge states while travelling inside the foil, i.e.  $H^+$  and  $H^0$ , as it has been experimentally reported in this energy range [15,20,21].

The trajectories of the fragments dissociated from the  $H_2^+$  molecular ion inside the foil were calculated by means of a computer code which has been described previously [12,13]. In this code we simulate the trajectories of each dissociated fragment by integrating the Newton equations of motion with a finite difference algorithm; in addition, we use a Monte Carlo code to incorporate the effects of the elastic scattering with the target nuclei [22]. The forces acting on each fragment are: the electronic self stopping force, the reciprocal wake forces due to the electronic excita-

tions induced by the fragments, and the Coulomb repulsion (depending on the charge states). The statistical fluctuations of the projectile energy loss is taken into account through the energy loss straggling, calculated using the dielectric formalism, where the dielectric properties of the aluminum target were modelled by a linear combination of Mermin type energy-loss functions [23] to describe the outer electron excitations [24] together with a generalized oscillator strength for the K-inner-shell electron excitations [25]. The wake forces between the fragments of the  $H_2^+$  molecule (both for protons and neutrals) were also calculated using the dielectric formalism [24]<sup>1</sup>.

The processes of charge exchange, in which electrons are captured or lost by the fragments, were incorporated in the code choosing randomly at each time-step of the finite difference algorithm a state of charge (neutral or proton) for the fragment, according to the equilibrium neutral charge fraction  $\Phi_0$ , which was a parameter of our simulation. At each time-step we have used the values of the wake forces, energy loss straggling and Coulomb repulsion corresponding to the chosen charge states.

After exiting the foil, the fragments experience a pure Coulomb repulsion in the vacuum if both projectiles are positively charged, or otherwise they move freely. Consideration of the Coulomb repulsion outside the foil is important because the Coulomb explosion occurring inside the foil is not complete, especially at the highest projectile energies. To take into account the angular acceptance of this experiment, we registered only those protons emerging within an angular cone  $0.05^\circ$  around the forward direction (which corresponds to the employed detector). Therefore, in order to have a good statistics in our results we needed to simulate up to  $\sim 10^7$  histories, depending on the projectile velocity and the fraction of neutrals we were considering.

<sup>1</sup> In the present work, we use the following parameters to describe the outer electron excitations of the aluminum target:  $A_1 = 1$ ,  $\alpha_1 = 0.551$  a.u. and  $\gamma_1 = 0.035$  a.u. For the L-shell:  $A_2 = 0.067$ ,  $\alpha_2 = 3.9$  a.u. and  $\gamma_2 = 3$  a.u.

Using this computer code we have calculated the energy distribution of the proton fragments exiting from 19 nm thick aluminum foils in the forward direction for the energies used in the experiment. For each incident projectile energy we have done several simulations varying the neutral charge fraction parameter  $\Phi_0$  to analyze the dependence of the energy distributions with  $\Phi_0$  and to compare them with the experimental spectra.

#### 4. Analysis of results

In order to compare the simulated energy distributions of the proton fragments dissociated from  $H_2^+$  molecules with the corresponding experimental spectra we convoluted the simulated distributions with Gaussians whose widths depend on the foil roughness coefficient and on the experimental energy resolution of the spectrometer [26]. Under the conditions of this experiment, the main broadening arises from the effect of foil roughness.

In Fig. 2 we show the convoluted energy distributions of the proton fragments dissociated from  $H_2^+$  molecules and exiting in the forward direction after traversing a 19 nm thick aluminum foil, and compare them with the experimental results, for different incident energies. The foil roughness coefficient used for the convolutions was 12%. We have included the calculations for several neutral charge fractions to determine the parameter  $\Phi_0$  which fits best the experimental distribution widths. All distributions are normalized to unit area. The open circles correspond to the experimental data shown in Fig. 1 while the set of lines correspond to simulations with different values of the neutral charge fraction  $\Phi_0$ , as indicated.

We can see from the simulations at high incident energies that if the neutral charge fraction is zero (i.e. all the fragments are protons), we obtain energy distributions with two peaks. These peaks correspond to the fragments that are retarded or accelerated due to the Coulomb repulsion. However we observe that, even at the highest energy (101.8 keV/u) the experimental distribution do not show the double-peak structure obtained from the

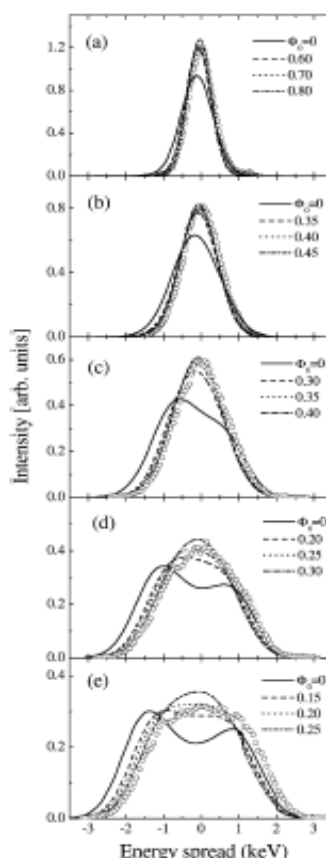


Fig. 2. Convoluted simulation energy distributions of the proton fragments of  $H_2^+$  molecules after traversing a 19 nm thick aluminum foil, together with the experimental data (open circles). The incident molecule energies are the same as in Fig. 1. The simulations corresponding to different values of the neutral charge fraction  $\Phi_0$  are indicated by the various lines.

simulation for the  $\Phi_0 = 0$  case. This is a strong indication that a significant neutral fraction is present at this energy. We can observe that the simulation with a neutral fraction of  $\approx 20\%$  yields a good representation of the data.

With decreasing energies the neutral charge fraction increases, therefore the path fraction in which both fragments travel as  $H^+$  diminishes, and so the action of the Coulomb repulsion is reduced, leading to a narrower energy distribution as observed in the figures. Simultaneously, there is an increase of those particles which did not experience repulsion at all, therefore increasing the central region of the energy distributions [14,27–29]. As Fig. 2 shows, this behavior is well represented by the simulations considering higher  $\Phi_0$  values as the energy decreases. By looking for the best fit with the experimental data we derive the values of  $\Phi_0$  representing the charge state fractions of the particles moving at different energies inside the solid.

In Fig. 3 we show the results of  $\Phi_0$  obtained by this method, as a function of the incident projectile energy. Additionally we have included in this figure a theoretical estimation [30] of the neutral state fraction, and experimental determinations [15,20,21] of the neutral fraction of hydrogen projectiles

emerging from aluminum foils. We notice the good agreement, within the scatter of the data, among the  $\Phi_0$  values obtained by different experiments and the present simulation.

## 5. Concluding remarks

We have studied both experimentally and through a computer simulation code the energy distributions of the fragments resulting from the dissociation of  $H_2^+$  molecules after traversing aluminum foils. It was possible to reproduce the experimental spectra including in the computer simulations two charge states of the hydrogen projectiles inside the foil, a frictional energy loss and its straggling, Coulomb explosion and wake forces, and elastic scattering with the atomic cores. We have focused on the intermediate range of projectile energies ( $E_0 \approx 25$ –100 keV/u) where the variation in neutral charge fraction is most important. This variation in the neutral charge fraction has a direct effect on the Coulomb repulsion undergone by the fragments, which greatly determines the width of the energy distributions. Comparing both experimental and simulated energy distributions we were able to obtain estimations of the charge state fractions of the molecular fragments inside the foil, which are in reasonably good agreement with data obtained by other methods. The shape of the energy distribution is also well described by our simulations.

## Acknowledgements

This work was financed by the Spanish Comisión Interministerial de Ciencia y Tecnología (projects 1FD97-1358-C02-01, BFM2000-1050-C02-01 and BFM2000-1050-C02-02) and the Argentinian FONCYT (project PICT 0303579) and CONICET PIP 4267/96. CDD thanks Ministerio de Educación de Chile and the Argentinian CONICET for postdoctoral fellowships and the Fundación Séneca (Comunidad Autónoma de la Región de Murcia) for economical support during his stay at the Universidad de Murcia.

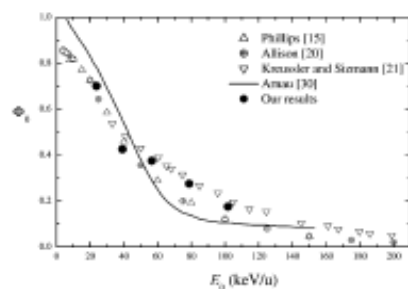


Fig. 3. Neutral charge fraction  $\Phi_0$  for  $H_2^+$  fragments in aluminum as a function of the projectile energy. Our results from the simulations are shown by solid circles. Other values for the case of protons in aluminum are also shown: experimental determinations ( $\Delta$ : Phillips [15],  $\circ$ : Allison [20],  $\nabla$ : Kressler and Simmann [21]) and a theoretical calculation (solid line: Aramu [30]).

## References

- [1] W. Brandt, A. Ratkowsky, R.H. Ritchie, *Phys. Rev. Lett.* **33** (1974) 1325.
- [2] N.R. Arista, *Nucl. Instr. and Meth. B* **164–165** (2000) 108.
- [3] Z. Vager, D.S. Gemmell, *Phys. Rev. Lett.* **37** (1976) 1352.
- [4] J. Remillieux, *Nucl. Instr. and Meth.* **170** (1980) 31.
- [5] D.S. Gemmell, *Chem. Rev.* **80** (1980) 301.
- [6] Y. Horino, M. Renda, K. Morita, *Nucl. Instr. and Meth. B* **33** (1988) 178.
- [7] A. Arnau, P.M. Echenique, R.H. Ritchie, *Nucl. Instr. and Meth. B* **40–41** (1989) 329.
- [8] E. Ray, R. Kirsch, H.H. Mikkelsen, J.C. Poirat, J. Remillieux, *Nucl. Instr. and Meth. B* **69** (1992) 133.
- [9] C.D. Denton, R. Garcia-Molina, I. Abril, N.R. Arista, *Nucl. Instr. and Meth. B* **135** (1998) 50.
- [10] R. Garcia-Molina, C.D. Denton, F.J. Pérez-Pérez, I. Abril, N.R. Arista, *Phys. Status Solidi (b)* **219** (2000) 23.
- [11] Y. Suzuki, M. Fritze, K. Kimura, M. Mamami, R. Garcia-Molina, I. Abril, *Phys. Rev. A* **62** (2000), Article number 12902.
- [12] R. Garcia-Molina, C.D. Denton, I. Abril, N.R. Arista, *Phys. Rev. A* **62** (2000), Article number 12901.
- [13] R. Garcia-Molina, I. Abril, C.D. Denton, N.R. Arista, *Nucl. Instr. and Meth. B* **164–165** (2000) 310.
- [14] R. Laubert, F.K. Chen, *Phys. Rev. Lett.* **40** (1978) 174.
- [15] J.A. Phillips, *Phys. Rev.* **97** (1955) 404.
- [16] A. Valenzuela, J.C. Eckardt, *Rev. Sci. Instr.* **42** (1971) 127.
- [17] H.H. Andersen, J.F. Ziegler, in: J.F. Ziegler (Ed.), *Hydrogen Stopping Powers and Ranges in All Elements, Stopping and Ranges of Ions in Matter*, Vol. 3, Pergamon, New York, 1977.
- [18] J.C. Eckardt, G.H. Lantschner, *Thin Solid Films* **249** (1994) 11.
- [19] P. Mertens, *Nucl. Instr. and Meth. B* **27** (1987) 315.
- [20] S.K. Allison, *Rev. Mod. Phys.* **30** (1958) 1137.
- [21] S. Kraussler, R. Siemann, *Phys. Rev. B* **26** (1982) 530.
- [22] W. Möller, G. Pospiech, G. Schneider, *Nucl. Instr. and Meth.* **130** (1975) 265.
- [23] N.D. Mermin, *Phys. Rev. B* **1** (1970) 2362.
- [24] I. Abril, R. Garcia-Molina, C.D. Denton, F.J. Pérez-Pérez, N.R. Arista, *Phys. Rev. A* **58** (1998) 357.
- [25] I. Abril, R. Garcia-Molina, N.R. Arista, C.F. Sanz-Navarro, *Nucl. Instr. and Meth. B* **190** (2002) 89.
- [26] J.C. Eckardt, G.H. Lantschner, N.R. Arista, R.A. Baragioña, *J. Phys. C* **11** (1978) 1851.
- [27] E.P. Kanter, P.J. Cooney, D.S. Gemmell, K.-O. Groeneveld, W.J. Plesch, A.J. Ratkowski, Z. Vager, B.J. Zabransky, *Phys. Rev.* **20** (1979) 834.
- [28] W.P. Plesch, D.S. Gemmell, P.J. Cooney, E.P. Kanter, D. Kurath, A.J. Ratkowski, Z. Vager, B.J. Zabransky, *Nucl. Instr. and Meth. B* **170** (1980) 61.
- [29] T.R. Fox, K. Lam, R. Levi-Strauss, *Nucl. Instr. and Meth.* **194** (1982) 285.
- [30] A. Arnau, Ph.D. Thesis, Universidad del País Vasco, León, 1989.

PHYSICAL REVIEW A 68, 054901 (2003)

Simulation of the molecular recombination yield for swift  $H_2^+$  ions through thin carbon foils

Rafael García-Molina and Manuel D. Barriga-Carrasco

Departamento de Física, Universidad de Murcia, Apartado 4021, E-30080 Murcia, Spain

(Received 8 May 2003; published 3 November 2003)

We have calculated the recombination yield for swift  $H_2^+$  molecular ions at the exit of thin amorphous carbon foils, as a function of the dwell time and incident energy. Our results are based on a detailed simulation of the motion through the target of the  $H_2^+$  molecular ion (before dissociation takes place) and its constituent fragments (after dissociation), including the following effects: Coulomb repulsion, nuclear scattering, electron capture and loss, as well as self-retarding and wake forces, which provide the relative distance and velocity of the dissociated fragments at the foil exit. The recombination of an  $H_2^+$  ion at the exit of the foil depends on the interproton separation and internal energy of the dissociated fragments, and on their probability to capture an electron. Comparison of our results with the available experimental data shows a good agreement.

DOI: 10.1103/PhysRevA.68.054901

PACS number(s): 34.50.Bw, 79.20.Rf

## I. INTRODUCTION

The interest in the study of energetic  $H_2^+$  beams interacting with solids lies in that  $H_2^+$  is the simplest molecular projectile, therefore it can be used to test effects due to the correlated motion in close proximity of two charged particles through a thin foil. These effects became apparent in the transmission yield of  $H_2^+$  molecular ions [1], as well as the charge states [2] and the energy loss [3] of the dissociated protons.

The  $H_2^+$  molecular ion is constituted by two protons and a bound electron; after entering the foil it travels a certain time without being dissociated, until it loses its bound electron [4], this gives two protons that move in close proximity, interacting between them and with the target electrons and nuclei. Although most of the detected projectiles at the exit of the foil are protons, there are also hydrogen atoms as well as a small fraction of hydrogen molecular ions. The transmitted molecules can be either original ones or recombined after their dissociation through the foil [1,5], depending on the dwell time.

The aim of this work is to calculate the transmission yield of recombined  $H_2^+$  molecular ions at the exit of thin carbon foils. For this purpose we simulate the motion through the solid of the initially nondissociated  $H_2^+$  during a short time and, after the dissociation takes place, the correlated motion of each pair of fragments. We have considered that the projectiles feel the following interactions: nuclear scattering, stopping force, wake force, and Coulomb explosion, the latter two appearing only for the dissociated fragments; the possibility of electronic capture or loss by these fragments is also included in our simulation. Therefore, when an electron is captured by a proton at the exit of the foil and if the interproton velocity and distance are favorable, a recombined  $H_2^+$  molecular ion will result.

In what follows we present the basic ingredients of our calculations (Sec. II), whose results are compared with available experimental data in Sec. III. The conclusions of this work appear in Sec. IV. In what follows we will use atomic units, except where otherwise stated.

## II. THEORETICAL AND SIMULATION BACKGROUND

The  $H_2^+$  molecular ions incident on the foil are characterized by their interproton distance  $R$  and orientation with respect to the beam velocity  $v$ .

When a molecular ion enters the amorphous carbon foil it moves during a short time ( $\sim 0.23$  fs [6]) without dissociating, suffering an electronic stopping force and collisions with the target nuclei. Once  $H_2^+$  dissociates into its constituents, each fragment also experiences both an electronic stopping force and nuclear scattering, plus the interactions due to the presence of its partner, which are the Coulomb repulsion (when both fragments are charged) and the electronic wake force [7].

Given a charge density, with Fourier transform  $\rho(k)$ , moving with velocity  $v$  through a target, the stopping force acting on it is statistical in nature and we assume that it has a Gaussian distribution whose mean value is the stopping power  $S_p$ , and its variance is related to the energy-loss straggling per unit path length,  $\Omega^2$ . In the dielectric formalism [8] these magnitudes are given by the following expressions:

$$S_p = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty dk \frac{\rho^2(k)}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \quad (1)$$

and

$$\Omega^2 = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty dk \frac{\rho^2(k)}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right]. \quad (2)$$

The target is characterized by its energy-loss function  $\operatorname{Im}[-1/\epsilon(k, \omega)]$ , which contains relevant information about its response to electronic excitations with momentum  $k$  and energy  $\omega$  induced by the passage of the swift charge. A procedure to describe reasonably well the energy-loss function of a realistic target has been published elsewhere [9–11] through a fitting to its optical properties at  $k=0$ , with a proper extension to  $k \neq 0$  values.

To obtain the values of  $S_p$  and  $\Omega^2$  for the nondissociated  $H_2^+$  molecular ion we consider that it consists of two protons and a bound electron described by a linear combination



## BRIEF REPORTS

PHYSICAL REVIEW A 68, 054901 (2003)

of Gaussian orbitals [12], assuming that the  $H_2^+$  ions enter the target with the interproton distance  $R$  randomly aligned with respect to incident velocity  $v$ , the following angular average of the squared charge density [12] must be replaced into Eqs. (1) and (2):

$$\rho^2(k) = \frac{A^2(k)}{2} \left[ 1 + \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + B^2(k) - 4A(k)B(k) \frac{\sin(kR/2)}{kR}, \quad (3)$$

where

$$A(k) = 2 - C(k), \quad (4)$$

$$B(k) = e^{-\alpha k^2/2} C(k), \quad (5)$$

$$C(k) = \frac{e^{-k^2/2}}{1 + e^{-\alpha k^2/2}}, \quad (6)$$

with  $\alpha = 0.43$  a.u. and  $R = 2.05$  a.u. for the hydrogen molecular ion [12].

The possibility that the dissociated fragments can capture or lose an electron inside the foil implies that the charge fractions  $\Phi_0$  and  $\Phi_+$  for each charge state  $H^0$  and  $H^+$ , respectively, have non-null values; the  $H^-$  fraction is negligible in the velocity range studied here [13]. The value of  $\Phi_0$  is available from experimental measurements [13,14].

In order to compute the forces due to the electronic excitations induced in the target by each projectile it is convenient to work with the cylindrical coordinates  $z$  and  $r$ , parallel and perpendicular, respectively, to the projectile velocity  $v$ . Using the dielectric formalism [8,9] to calculate the force produced by a dissociated fragment, with charge density  $\rho_1$  on the other dissociated fragment charge density  $\rho_2$  at the relative position  $(z, r)$ , the cylindrical components of this force are given by the following expressions:

$$F_z(z, r) = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty dk \frac{\rho_1(k) \rho_2(k)}{k} \int_0^{kz} d\omega \omega J_0(r \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \times \left( \sin\left(\frac{\omega z}{v}\right) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] + \cos\left(\frac{\omega z}{v}\right) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right) \quad (7)$$

and

$$F_r(z, r) = \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty dk \frac{\rho_1(k) \rho_2(k)}{k} \times \int_0^{kz} d\omega \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} J_1(r \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \times \left( \cos\left(\frac{\omega z}{v}\right) \operatorname{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] - \sin\left(\frac{\omega z}{v}\right) \operatorname{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right), \quad (8)$$

where  $J_n(\dots)$  are Bessel functions of the first kind.

The Fourier transform of the charge density  $\rho(k)$  is chosen according to the type of fragment:

$$\rho(k) = \begin{cases} 1 & \text{for } H^+, \\ 1 - \frac{1}{[1 + (k/2)^2]^2} & \text{for } H^0. \end{cases} \quad (9)$$

Each possible charge state is taken according to its corresponding probability, which is equivalent to its charged fraction (because  $\Phi_0 + \Phi_+ = 1$ ).

It is worth noting that Eq. (7) evaluated at the coordinates  $(z=0, r=0)$  simplifies considerably to give the stopping power  $S_p$  for a given projectile when replacing  $\rho_1(k) \rho_2(k)$  by the square of the corresponding charge density  $\rho^2(k)$  [cf. Eq. (1)].

Our computer code, whose details appear elsewhere [7], numerically solves Newton's equations of motion for each projectile: the molecular ion or its dissociated fragments (either a proton or a hydrogen atom), taking into account all the forces that act on each particle. Only when the charge state of both fragments is nonzero will they feel a Coulomb repulsion along the interproton direction. We have used a Monte Carlo algorithm [15] to account for binary collisions with the target nuclei, which contribute mainly to deviations in the trajectory direction and in a smaller amount to energy losses; the universal interatomic potential [16] was used for this purpose. For the case of the dissociated fragments we neglect coherent scattering because it is a small effect in the velocity range discussed in this work [17].

The distribution of  $R$  values for the incident molecular ions is chosen according to the population of vibrational levels of  $H_2^+$  (which was calculated using the Frank-Condon principle); the orientation of the interproton axis was taken randomly from a uniform distribution. Given the positions and velocities of the particles as well as the forces acting on them at each time  $t$ , the simulation provides the corresponding new positions and velocities after an elapsed time  $\Delta t$ . In this manner, the relative positions and velocities when the fragments leave the target can be known.

Once the fragments reach the rear surface of the foil,  $H_2^+$  molecular recombination can only take place when the three following conditions are fulfilled: (i) One of the fragments has captured an electron; (ii) the internal energy  $E_{\text{int}}$  of the system is smaller than the maximum of the effective potential energy for dissociation:

$$E_{\text{int}} < U_{\text{eff max}}(R, V), \quad (10)$$

where

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2} \mu V^2 + U_{\text{eff}}(R, V) = \frac{1}{2} \mu V^2 + U(R) + \frac{L^2}{2 \mu R^2}, \quad (11)$$

## BRIEF REPORTS

PHYSICAL REVIEW A 68, 054901 (2003)

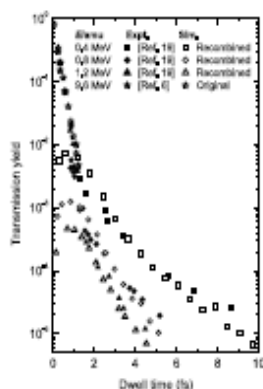


FIG. 1. Yield of transmitted  $H_2^+$  molecular ions through amorphous carbon foils, as a function of the dwell time. Solid symbols represent experimental data for several incident energies ( $t < 1$  fs, originally transmitted [6];  $t > 1$  fs, recombined [19]) and empty symbols are the results of our simulations for recombined molecular ions.

(iii) the value of the interproton distance  $R$  is comprised between the classic turning points of the effective potential well  $U_{\text{eff}}$ . In the above expressions  $\mu$ ,  $V$ , and  $L$  are, respectively, the reduced mass, the module of the relative velocity, and the module of the relative angular momentum ( $\vec{L} = \mu \vec{R} \times \vec{P}$ ), corresponding to the two fragments of the  $H_2^+$  molecular ion;  $U(R)$  is the  $1s\sigma_g$  ground-state potential energy [18].

## III. RESULTS

Figure 1 shows the fraction of transmitted  $H_2^+$  ions through thin carbon foils, as a function of the dwell time. The solid symbols correspond to experimental data [19] for recombined molecular ions with incident energy in the range 0.4–1.2 MeV/amu; for comparison purposes, also the fraction of transmitted original molecular ions is depicted for the case of higher incident energy [6], 9.6 MeV/amu, corresponding to very small dwell times. The two regimes (recombined and original transmission) can be clearly appreciated through the different slopes and the ordinate intercept at  $t \rightarrow 0$ . The results of our simulation for the recombined molecules (0.4–1.2 MeV/amu incident energy) are depicted by open symbols, showing a rather good agreement with the experimental data; the symbols appearing at small dwell times show how the small contribution of recombined molecular ions is masked by the rather larger number of molecular ions that were transmitted without dissociation.

According to Cue *et al.* [19,20] the fraction  $Y$  of detected  $H_2^+$  molecular ions depends on the dwell time  $t$  through

$$Y(t) = (1 - B) \exp(-t/\tau) + B \exp(-bt), \quad (12)$$

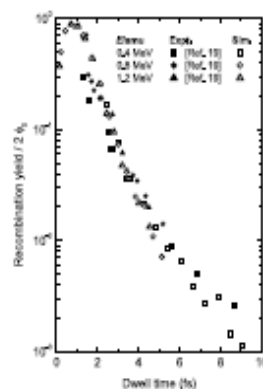


FIG. 2. Recombination yields shown in Fig. 1, but normalized to twice the proton neutral fraction for each incident energy.

where  $B$ ,  $b$ , and  $\tau$  are constants for a certain velocity and for a given material. The first summand of the previous equation accounts for the fraction of originally transmitted  $H_2^+$  ions and the second summand represents the fraction of recombined  $H_2^+$  ions. As  $B \ll 1$  for high energies,  $\tau$  is interpreted as the lifetime of the molecular ion inside the solid [20], and can be considered velocity independent [21]. The last term in Eq. (12) does not tend to 1 for  $t \rightarrow 0$ , it decays more smoothly than the first term and depends strongly on the velocity of the molecular ion; this behavior is in good qualitative agreement with the (experimental and calculated) results shown in Fig. 1. For  $t \sim 2$  fs the calculated values of  $Y$  are slightly larger than the experimental data; however states having  $E_{\text{int}}$  very close to  $U_{\text{el}}(R_{\text{max}})$  could dissociate, resulting in a reduction of the calculated recombination yield.

The probability that two protons exit the foil as  $H^+-H$  can be written as  $P_{H^+-H} = 2\Phi_+ \Phi_0$ . For molecules having  $\sim$  MeV/amu incident energies,  $\Phi_+$  is close to unity so  $P_{H^+-H} \approx 2\Phi_0$  and the molecular recombination yields can be divided by twice the neutral fraction at that velocity,  $Y/2\Phi_0$ . These normalized recombination yields are shown in Fig. 2, with data for  $\Phi_0$  taken from Ref. [13]; it can be seen that all the normalized recombination yields practically merge into a single curve that is a function of only the dwell time.

As it can be seen, our calculations reproduce satisfactorily well the recombination yield data for a wide range of dwell times and incident energies. From the detailed simulation we have performed, we conclude that although the recombination yield is mostly affected by the Coulomb repulsion, the proper inclusion of the other interactions felt by the dissociated fragments (nuclear scattering, wake forces, ...) is necessary to have a good agreement with experimental data.

## IV. CONCLUSIONS

The recombination yield of  $H_2^+$  molecular ions through thin carbon foils has been simulated and the results compare

## BRIEF REPORTS

fairly well with available experimental data [19].

The main ingredients in the simulation are the proper description of target energy-loss function, and the interactions felt inside the solid by the molecular ion (before dissociation) and by the molecular fragments (once they become dissociated), as well as the inclusion of the electronic-capture and -loss processes by each one of these fragments. Taking into account all these considerations, the dynamical evolution of the fragments provides their coordinates and velocities at any time in the foil; these magnitudes are used to calculate the relative position and velocity of these fragments when they leave the foil.

When two dissociated protons exit the rear surface of the foil we assume that an  $H_2^+$  molecular ion is reconstructed if (i) one of the protons captures an electron, (ii) the internal energy of the system formed by the two protons and the

PHYSICAL REVIEW A 68, 054901 (2003)

captured electron is less than the relative maximum of the effective energy corresponding to the  $H_2^+$  ground electronic level, and (iii) the interproton separation falls between the classical turning points of the effective potential energy.

Our detailed program can be used to check how significantly the different interactions or the proposed recombination mechanism affect the final result.

## ACKNOWLEDGMENTS

This work was financed by the Spanish Ministerio de Ciencia y Tecnología (through Project No. BFM2000-1050-C02-01) and the Spanish Ministerio de Educación, Cultura y Deporte (through a grant to M.D.B.-C). Interesting discussions with Santiago Harediz-Avalos are acknowledged.

- [1] J.C. Poizat and J. Remillieux, *Phys. Lett.* 34A, 53 (1971).
- [2] B.T. Meggitt, K.G. Harrison, and M.W. Lucas, *J. Phys. B* 6, L362 (1973).
- [3] W. Brandt, A. Ratkowski, and R.H. Ritchie, *Phys. Rev. Lett.* 33, 1325 (1974).
- [4] N. Bohr, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 13, No. 8 (1948).
- [5] M.J. Gaillard, J.C. Poizat, A. Ratkowski, and J. Remillieux, *Nucl. Instrum. Methods* 132, 69 (1976).
- [6] Y. Suzuki, M. Fritz, K. Kimura, M. Mamami, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, and H. Ikegami, *Phys. Rev. A* 50, 3533 (1994).
- [7] R. García-Molina, C.D. Denton, I. Abell, and N.R. Arista, *Phys. Rev. A* 62, 012901 (2000).
- [8] J. Lindhard and A. Winther, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 34, No. 4 (1964).
- [9] I. Abell, R. García-Molina, C.D. Denton, F.J. Pérez-Pérez, and N.R. Arista, *Phys. Rev. A* 58, 357 (1998).
- [10] I. Abell, R. García-Molina, N.R. Arista, and C.F. Sanz-Navarro, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 190, 89 (2002).
- [11] J.C. Moreno-Marín, I. Abell, and R. García-Molina, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 193, 30 (2002).
- [12] T. Kaneko, *Phys. Rev. A* 51, 535 (1995).
- [13] N.V. de Castro Faria, F.L. Freire, Jr., J.M.F. Jeronimo, E.C. Montenegro, A.G. de Pinho, and D.P. Almeida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 17, 321 (1986).
- [14] A. Chateau-Thierry, A. Gladioux, and B. Denauay, *Nucl. Instrum. Methods* 132, 553 (1976).
- [15] W. Möller, G. Pospiech, and G. Schrieder, *Nucl. Instrum. Methods* 130, 265 (1975).
- [16] J.F. Ziegler, J.P. Biersack, and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, The Stopping and Ranges of Ions in Matter Vol. 1 (Pergamon, New York, 1985).
- [17] R. García-Molina, I. Abell, C.D. Denton, and N.R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 164-165, 296 (2000).
- [18] A. Aguado, O. Roncero, C. Tablero, C. Sanz, and M. Paniagua, *J. Chem. Phys.* 112, 1240 (2000).
- [19] N. Cue, N.V. de Castro-Faria, M.J. Gaillard, J.C. Poizat, J. Remillieux, D.S. Gemmell, and I. Plesser, *Phys. Rev. Lett.* 45, 613 (1980).
- [20] N. Cue, N.V. de Castro-Faria, M.J. Gaillard, J.C. Poizat, and J. Remillieux, *Nucl. Instrum. Methods* 170, 67 (1980).
- [21] J. Remillieux, *Nucl. Instrum. Methods* 170, 31 (1980).

PHYSICAL REVIEW A 68, 062902 (2003)

# Vicinity forces between molecular and atomic fragments dissociated from small hydrogen clusters and their effects on energy distributions

Mamuel D. Barriga-Carrasco and Rafael García-Molina

Departamento de Física, Universidad de Murcia, Apartado 4021, E-30080 Murcia, Spain

(Received 15 July 2003; published 18 December 2003)

In this paper we analyze the dynamic evolution of molecular and atomic fragments of small hydrogen clusters interacting with thin solid foils. We compare the vicinity forces, calculated within the dielectric formalism, for  $H^+$ ,  $H^0$ , and  $H_2^+$  fragments. Using a molecular dynamics numerical code we determine the energy distribution of the fragments after interacting with the target. This distribution is compared to experimental results for protons coming from the fragmentation of  $v = 2.02$  a.u.  $H_2^+$  ions impinging on an aluminum foil; a fraction of neutral  $H^0$  is needed to be included in the simulation to get a good agreement with the experimental results. The  $H_2^+$  energy spectra for  $v = 5.42$  a.u.  $H_2^+$  interacting with amorphous carbon is also determined. The asymmetry in the Coulomb peaks appearing in the energy spectra both experimentally and in our calculation is opposite for  $H_2^+$  than in  $H^+$ ; kinematic effects and differences in the electronic stopping are enough to reproduce the difference in the alignment of  $H_2^+$  and  $H^+$  fragments.

DOI: 10.1103/PhysRevA.68.062902

PACS number(s): 34.50.Bw, 36.40.-c

## I. INTRODUCTION

The interaction of molecular beams with solids at  $v > v_0$  (Bohr velocity) introduces new insights into the study of projectiles with matter. Molecular projectiles lose their bound electrons and dissociate just after entering the target [1]. The result is a cluster of ions where each of them interacts with the target material and at the same time with the other ions of the cluster [1]. From the analysis of the fragment evolution one can get detailed information on the dynamical properties of the target (induced field, collision rate, etc.). These properties greatly affect the energy distribution of the fragments after they interact with a thin foil, so the study of their energy spectra give the opportunity to compare theoretical models with experimental results.

When a molecular ion moves through a solid without being dissociated it is supposed to be subjected to the same interactions than an atomic projectile, mainly (i) the electronic stopping and straggling and (ii) the collisions with the target nuclei. Once the molecule becomes dissociated additional forces have to be taken into account between the fragments: (iii) Coulomb repulsion and (iv) induced force through the electronic medium of the target, which is known as vicinity force.

In the present work atomic and molecular vicinity forces are analyzed within the dielectric formalism. Fermi [2] was the first to use this formalism to study the interaction of swift charged particles with target electrons. Lindhard [3] obtained an analytical expression for the dielectric function  $\epsilon(k, \omega)$  of the stopping medium, which was improved later in a unified theory of the stopping of charged projectiles [4]. Many dielectric function models have been established since then; the ones developed to describe dielectric response of semiconductors [5–7], or the ones developed from the Drude model [8]. Here we use a dielectric function developed by our group that has been optimized for several materials [9–12]. It is based on a linear combination of dielectric functions proposed by Mermin [13] for outer electron excitations,

together with generalized oscillator strengths for inner-shell electron excitations. The parameters entering the Mermin function are derived from a fitting to the experimental energy-loss function (ELF) in the optical limit [9–12].

There are many theoretical and experimental works on vicinity forces that demonstrate that these forces affect the energy loss and charge of fragments dissociated from molecular ions and also tend to align these fragments in the beam direction [14–18] (see Ref. [14] for a complete list of older works). An experimental evidence of the alignment effect is provided by the asymmetric heights of the external peaks that appear in the energy spectra of dissociated fragments [17,19–25]; these peaks are usually known as Coulomb peaks.

Interactions (i)–(iv) have been deeply studied by our research group in the last years [25–29] including a molecular dynamics treatment of the vicinity forces between two neighbor protons. The main aim of this work is to calculate theoretically the vicinity forces between the different types of fragments from small hydrogen clusters and to check this calculation by evaluating, through a simulation code, the asymmetry in the heights of the Coulomb peaks appearing in the fragments energy spectra.

In Sec. II vicinity forces between two general charge densities will be analyzed using the dielectric formalism and specifically calculated between atomic hydrogen species and  $H_2^+$  molecular ions. In Sec. III our molecular dynamics code will be briefly described, and in Sec. IV the computed energy distributions are compared with experimental spectra. Finally, the conclusions are presented in Sec. V. Throughout this work we use atomic units, in other case it will be specified.

## II. VICINITY FORCES

In this section we analyze the vicinity force that a moving particle  $P_1$  with charge density  $\rho_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t)$  produces on a second particle  $P_2$  with charge density  $\rho_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t)$ , when both are embedded in a uniform electron gas characterized by its

M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCÍA-MOLINA

PHYSICAL REVIEW A 68, 062902 (2003)

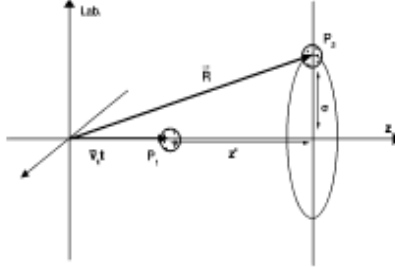


FIG. 1. Parallel  $z'$  and perpendicular  $\sigma$  coordinates from the center of the charge density 1 to the center of the charge density 2. Vectors  $\mathbf{v}_1$  and  $\mathbf{R}$  are the positions of the particles 1 and 2, respectively, in the laboratory frame.

dielectric function  $\epsilon(k, \omega)$ . Following the dielectric formalism, the induced potential  $\phi_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t)$  produced by  $P_1$  is [11]

$$\phi_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2\pi^2} \int \frac{d^3k}{k^2} \int d\omega e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \times \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \rho_{\text{ext}}(\mathbf{k}, \omega), \quad (1)$$

where  $\rho_{\text{ext}}(\mathbf{k}, \omega)$  is the Fourier transform of  $\rho_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t)$ .

If  $P_2$  is supposed to move at a constant velocity  $\mathbf{v}$  along the  $z$  axis (Fig. 1), we have then

$$\rho_{\text{ext}}(\mathbf{r}, t) = \rho_{\text{ext}}(\mathbf{r} - \mathbf{v}t), \quad (2)$$

which, in the Fourier space, becomes

$$\begin{aligned} \rho_{\text{ext}}(\mathbf{k}, \omega) &= \int d\mathbf{r} \int dt e^{-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \rho_{\text{ext}}(\mathbf{r} - \mathbf{v}t) \\ &= 2\pi \delta(\omega - \mathbf{k} \cdot \mathbf{v}) \rho_{\text{ext}}(\mathbf{k}). \end{aligned} \quad (3)$$

The potential energy of  $P_2$ , centered at  $\mathbf{R}$ , induced by  $\phi_{\text{ind}}(\mathbf{r}, t)$  is finally

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_p(\mathbf{r}, t) &= \frac{2}{(2\pi)^3} \int d^3r \int \frac{d^3k}{k^2} \int d\omega e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \\ &\times \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \rho_{\text{ext}}(\mathbf{k}, \omega) \\ &\times \int d^3k' e^{-i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{R}} \rho_{\text{ext}}(\mathbf{k}') e^{i\mathbf{k}' \cdot \mathbf{r}}. \end{aligned} \quad (4)$$

For charge densities with spherical symmetry and using the property  $\epsilon(k, \omega) = \epsilon^*(k, -\omega)$  [30], this expression turns into

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_p(z', \sigma) &= \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega J_0(\sigma \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ &\times \rho_{\text{ext}}(k) \rho_{\text{ext}}(k) \left[ \cos(\omega z'/v) \text{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ &\left. - \sin(\omega z'/v) \text{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right], \end{aligned} \quad (5)$$

where  $z'$  and  $\sigma$  are the coordinates of  $P_2$  parallel and perpendicular to  $P_1$  motion in the reference frame centered on  $P_1$  (Fig. 1), and  $J_0(x)$  is the zeroth-order Bessel function. We see from Eq. (5) that the potential energy will only depend on  $z'$  and  $\sigma$  for a given target material.

The  $\mathbf{F}(z', \sigma)$  vicinage force can be derived from the potential energy through

$$\mathbf{F}(z', \sigma) = -\nabla \mathcal{E}_p(z', \sigma). \quad (6)$$

From Eqs. (5) and (6) the parallel and perpendicular components of this force are written as

$$\begin{aligned} F_{z'}(z', \sigma) &= -\frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_0(\sigma \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \\ &\times \rho_{\text{ext}}(k) \rho_{\text{ext}}(k) \left[ \sin(\omega z'/v) \text{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ &\left. + \cos(\omega z'/v) \text{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right], \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} F_{\sigma}(z', \sigma) &= -\frac{2}{\pi v} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega J_1(\sigma \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \\ &\times \rho_{\text{ext}}(k) \rho_{\text{ext}}(k) \left[ \cos(\omega z'/v) \text{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right. \\ &\left. - \sin(\omega z'/v) \text{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right], \end{aligned} \quad (8)$$

where  $J_1(x)$  is the first-order Bessel function.

The vicinage force in Eqs. (7) and (8) only include the induced force, not the Coulomb repulsive force. Equations (7) and (8) give the induced force  $\mathbf{F}_{1 \rightarrow 2}(z', \sigma)$  that  $P_1$  produces on  $P_2$ . However  $\mathbf{F}_{1 \rightarrow 2}(z', \sigma) \neq -\mathbf{F}_{2 \rightarrow 1}(z', \sigma)$  because to calculate  $\mathbf{F}_{2 \rightarrow 1}$  we have to use the velocity of  $P_2$  and the  $z'$  and  $\sigma$  coordinates in the  $P_2$  motion reference frame (in the following  $P_1$  will represent the particle that generates the induced field). Vicinage force also depends on the stopping medium through its dielectric function  $\epsilon(k, \omega)$ .

Putting  $z' = \sigma = 0$  and  $\rho_{\text{ext}} = \rho_{\text{ext}}^0$ ,  $F_{z'} = 0$ , and  $F_{\sigma}$  yields the self-retarding particle force  $F_s$ . The variation of the projectile kinetic energy is  $dE = F_s v dt$  so the electronic stopping  $S_e$  defined as the energy loss per unit path length becomes

$$S_e = \frac{1}{\sigma} \frac{dE}{dt} = -F_{s, \sigma}(z' = 0, \sigma = 0). \quad (9)$$



VICINAGE FORCES BETWEEN MOLECULAR AND ...

PHYSICAL REVIEW A 68, 062902 (2003)

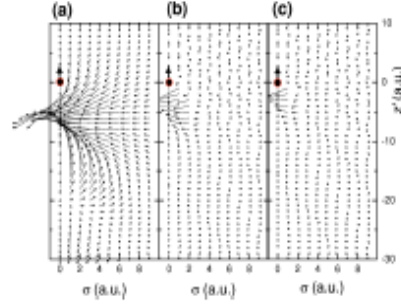


FIG. 2. Vicinage force generated by a proton, located at (0,0) moving through amorphous carbon in the  $z'$  direction with a velocity of  $v = 5$  a.u., onto (a) another proton, and (b) an hydrogen atom located at  $(z', \sigma)$ . (c) The same for the force generated by a hydrogen atom onto another hydrogen atom. Vector modulus represents the same arbitrary units in the three cases.

Then we get the well-known self-retarding force formula

$$S_s = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^{\infty} \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega \operatorname{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right] \rho_{\text{ext}}^2(k). \quad (10)$$

#### A. Vicinage forces between atomic hydrogen species

In this section vicinage forces between different atomic hydrogen species in solid targets will be calculated. We consider velocities greater than the Bohr velocity, thus  $H^-$  can be neglected [31–34] and only  $H^+$  and  $H^0$  are taken into account. The effects of these vicinage forces in the energy spectra at zero angle of the different hydrogen species that exit the solid foils will be simulated and compared to experiments later on.

To calculate these vicinage forces one has to substitute into Eqs. (7) and (8) the Fourier transform of the appropriate charge densities corresponding to the fragments dissociated from the molecular ion. There are three kinds of vicinage forces between  $H^+$  and  $H^0$  fragments: namely, those corresponding to the couples  $H^+-H^+$ ,  $H^+-H^0$ , and  $H^0-H^0$ .

For the simplest case, the vicinage force that a  $H^+$  produces on another  $H^+$ , we have  $\rho_{\text{ext}}(k) = \rho_{\text{ext}}(k) = 1$ . The result of this force can be seen in Fig. 2(a) when the velocity is  $v = 5$  a.u. and the target is amorphous carbon, whose  $\epsilon(k, \omega)$  has been calculated in Ref. [11]. This vicinage force presents an oscillatory behavior behind  $P_1$ , with a wavelength  $\lambda \sim v/\omega_p$  (where  $\omega_p$  is the plasmon frequency of the material). This oscillation is damped because the plasmon lifetime is not infinite, which is taken into account in Mermin dielectric function [13] through a collision term. On the other hand, vicinage force decays transversely almost exponentially. Then it is clear that the neighboring particle  $P_2$  will experience a stopping or an accelerated force according to its coordinates  $(z', \sigma)$  regarding the position and velocity of  $P_1$ . The parallel component  $F_z$ , will cause stopping or accelera-

tion of  $P_2$ , while the perpendicular component  $F_\sigma$  will cause a change of direction.

The case of the force that a  $H^+$  creates on a  $H^0$  and vice versa can be found in the same way as the  $H^+-H^+$  vicinage force but taking into account that one of the charge densities is a  $H^+$  and the other one is a  $H^0$ . In this work it will be supposed that the hydrogen atom is in its ground state, because the population of excited states is very small in our velocity range [35], and this ground state is unperturbed. Thus the charge density of the hydrogen atom in the Fourier space is given by

$$\rho_{\text{ext}}(k) = 1 - \rho_{\text{el}}(k), \quad (11)$$

where the Fourier transform of the electronic density in the ground state is

$$\rho_{\text{el}}(k) = [1 + (k/2)^2]^{-2}. \quad (12)$$

Figures 2(b) and 2(c) show  $H^+-H^0$  and  $H^0-H^0$  vicinage forces for a velocity  $v = 5$  a.u. in amorphous carbon, respectively. To calculate the  $H^+-H^0$  force, charge densities  $\rho_{\text{ext}}(k)$  and  $\rho_{\text{ext}}(k)$  have been substituted by 1 and by Eq. (11) into Eqs. (7) and (8), respectively. To calculate the  $H^0-H^0$  force both charge densities  $\rho_{\text{ext}}(k)$  and  $\rho_{\text{ext}}(k)$  have been substituted by Eq. (11) into Eqs. (7) and (8). Comparing Figs. 2(a) and 2(b), we see a substantial difference in the modulus of the forces and in the wavelength of the oscillations of the force direction. Figure 2(c) shows that the  $H^0-H^0$  force is insignificant in relation to the  $H^+-H^+$  and  $H^+-H^0$  forces, except for  $-15 < z' < 0$  a.u., and in the  $\sigma$  direction beyond  $\sigma = 4$  a.u. The  $H^+-H^0$  force has less intensity and range than the  $H^+-H^+$  one, which is due to the electronic density of the hydrogen atom. And in its turn, the  $H^0-H^0$  force has smaller intensity and range than the  $H^+-H^0$  one, due to the electronic density of the two hydrogen atoms.

#### B. Vicinage forces between a molecular $H_2^+$ ion and an atomic hydrogen species

This section studies the electronic vicinage forces between a  $H_2^+$  ion and an atomic hydrogen species. To calculate the vicinage forces in these cases, the Fourier transform of the  $H_2^+$  ion charge density,  $\rho_{\text{ext}}(k)$ , is needed. Supposing that the  $H_2^+$  electronic density is mostly in the ground molecular level  $\sigma_g 1s$  and considering Gaussian wave functions to describe this level, we have [36]

$$\rho_{\text{ext}}(k) = [Z_1 - N_G^2 e^{-k^2/8\alpha}] e^{-k \cdot R/2} + [Z_1 - N_G^2 e^{-k^2/8\alpha}] e^{i k \cdot R/2} - N_G^2 e^{-k^2/8\alpha} 2 e^{-\alpha^2 R^2/2}, \quad (13)$$

where  $Z_1 = 1$  is the charge of each proton of  $H_2^+$  nucleus,  $R$  is the internuclear vector (which modulus is  $R = 2.05$  a.u.),  $\alpha = 0.43$  a.u. is the electronic orbital parameter, and  $N_G$  is the normalization factor for the electronic molecular orbital:

M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCÍA-MOLINA

$$N_G = \left[ \frac{1}{2[1 + \exp(-\alpha \rho^2/2)]} \right]^{1/2}. \quad (14)$$

As the Fourier transforms of the ion charge densities in Eqs. (7) and (8) depend only on the modulus of  $k$ , we can divide  $\rho_{\text{extH}_2^+}(k)$  in three spherical charge densities centered at different positions in the real space (as  $e^{-ik \cdot R}$  represents an  $R$  displacement in the real space), i.e.,

$$\rho_{\text{extH}_2^+}(k) = \rho_{\text{H}_2^+}(k)e^{-ik \cdot R/2} + \rho_{\text{H}_2^+}(k)e^{ik \cdot R/2} + \rho_{\text{H}_2^+}(k), \quad (15)$$

where  $\rho_{\text{H}_2^+}(k) = Z_1 - N_G^2 e^{-k^2/2}$  and  $\rho_{\text{H}_2^+}(k) = -N_G^2 e^{-k^2/2} 2e^{-\alpha \rho^2/2}$ . So the vicinage force of a  $\text{H}_2^+$  ion on  $\text{H}^+$  can be expressed as

$$\begin{aligned} \mathbf{F}_{\text{H}_2^+ - \text{H}^+}(\mathbf{r}, t) = & \mathbf{F}_d(\mathbf{r} - \mathbf{P}/2, t) + \mathbf{F}_d(\mathbf{r} + \mathbf{P}/2, t) \\ & + 2e^{-\alpha \rho^2/2} \mathbf{F}_d(\mathbf{r}, t), \end{aligned} \quad (16)$$

where  $\mathbf{F}_d$  is the vicinage force between charge densities  $\rho_{\text{extH}_2^+}(k) = \rho_{\text{H}_2^+}(k)$  and  $\rho_{\text{extH}^+}(k) = 1$ , whereas  $\mathbf{F}_d$  is the vicinage force between charge densities  $\rho_{\text{extH}_2^+}(k) = \rho_{\text{H}_2^+}(k)$  and  $\rho_{\text{extH}^+}(k) = 1$ .

When a  $\text{H}_2^+$  ion moves inside a target material its internuclear vector orientation is random, and although considering the modulus of the internuclear vector constant ( $|\mathbf{P}| = P = 2.05$  a.u.), their components,  $P_{\parallel}$  and  $P_{\perp}$ , are not. Vicinage force will depend on the  $\text{H}_2^+$  internuclear vector orientation so in our computer code we draw it randomly each time we calculate this force.

The vicinage force  $\mathbf{F}_{\text{H}_2^+ - \text{H}^+}$  is depicted in vectorial form in Fig. 3 for the case when the internuclear vector of the  $\text{H}_2^+$  ion is parallel to its velocity. This force has a similar magnitude but an extended shape as compared to the vicinage force between two protons reported in Fig. 2(a). Also we can see that  $\mathbf{F}_{\text{H}_2^+ - \text{H}^+}$  has two characteristic minimum values at the proton positions of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion.

To conclude this section, it is worth to remark that the same procedure can be used to calculate vicinage forces between any complex molecules if their charge densities can be treated as a combination of spherical charge densities.

### III. SIMULATION CODE

Our research group has developed a numerical code to follow the trajectories of the fragments dissociated from molecular ions, which has been described elsewhere [25,28,37]. Here it is summed up in a few conspicuous points featuring this work.

Inside the target the molecular ion moves first without dissociating, and secondly dissociated into its fragments. The time traveling nondissociated is drawn from the lifetime of the molecule [38–41]. The electronic stopping and straggling are calculated through the dielectric formalism, as it was done with the vicinage forces in the last section [36,37]. Nuclear collisions are computed adapting a Monte Carlo al-

PHYSICAL REVIEW A 68, 062902 (2003)

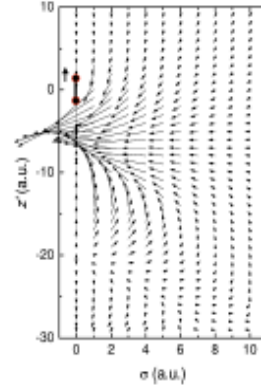


FIG. 3. Force generated by a  $\text{H}_2^+$ , located at  $(0,0)$  moving in amorphous carbon in the  $z'$  direction with a velocity  $v = 5$  a.u., on a proton located at  $(z', \sigma)$ . The  $\text{H}_2^+$  internuclear vector is oriented in the  $z'$  direction. Vector modulus represents the same arbitrary units as in Fig. 2.

gorithm developed by Möller *et al.* [42] involving the classical theory of the angular dispersion and elastic energy loss with a Thomas-Fermi Coulomb screened potential and the universal screening distance [43]. After the dissociation of the molecule, the fragments suffer Coulomb repulsions and the vicinage forces explained in Secs. II A and II B. The effect of coherent scattering was shown to represent a small correction to other effects in this velocity range [28] so it is left out of our calculations.

The initial geometry of each molecular ion has been taken into account because the forces between fragments depend strongly on the modulus and on the orientation of the internuclear vectors regarding to the motion direction of the beam. For the case of  $\text{H}_2^+$ , the initial internuclear distance is drawn from an internuclear distribution theoretically calculated using the Franck-Condon principle [44]. The initial internuclear distances for  $\text{H}_2^+$  molecular ions are drawn from experimental internuclear distributions [20,21]. Besides, the initial geometry of the molecule is characterized by a orientation obtained from a random draw of Euler angles.

The simulation code uses a standard molecular dynamics method to follow the evolution of a system of particles, using a numerical integration of Newton equations. It is also considered in a simple way the possibility that the fragments can capture or lose an electron inside the foil to account for the different vicinage forces. In order to implement these processes in the computer code, the charge of each particle has been chosen randomly at each time step of the numerical integration of Newton equations, according to the equilibrium charge fraction corresponding to its velocity [34]. For our velocity range,  $\text{H}^+$  and  $\text{H}^0$  have different electronic stopping but the same differential scattering cross section for ion-ion collision. On the other hand  $\text{H}_2^+$  electronic stopping

is smaller than twice the proton one [36] and the same differential scattering cross section as a  $D^+$  ion. Also vicinage forces depend of the charge state of the two fragments as it has been studied in Secs. II A and II B. Coulomb repulsion are taken into account only between positive fragments inside and also outside the foil. Considering Coulomb repulsion outside thin foils is important because Coulomb explosion inside the target is not complete, especially at highest fragment velocities. The trajectories are calculated until the projectile reaches the detector, and the experimental angular acceptance is taken into account in order to consider the effects of a finite resolution detector.

#### IV. RESULTS

When a molecular ion is dissociated in two positive fragments, the energy spectrum at zero exit angle of these two fragments is characterized by a lower- and a higher-energy peak. These peaks correspond to the fragments that are retarded or accelerated, respectively, due to Coulomb repulsion, so they are called Coulomb peaks. The asymmetric heights of the Coulomb peaks are due to the asymmetry of the vicinage force, which tend to align the neighbor fragments in the velocity direction. As the vicinage force is more intense behind the fragment that generates the force, the trailing fragment tends to be aligned behind the leading fragment motion direction and so the lower-energy Coulomb peak becomes more intense in the energy spectra [17,19–25,28].

In what follows we will analyze  $H^+$  and  $H^0$  vicinage force effects in the energy distribution of  $H^+$  ions dissociated from  $H_2^+$  ions, and  $H_2^+$ ,  $H^+$ , and  $H^0$  vicinage force effects in the energy distribution of  $H_2^+$  ions dissociated from  $H_3^+$  ions.

##### A. Vicinage force effects in the energy distribution of $H^+$ ions

In order to analyze the vicinage forces between atomic hydrogen species, simulated energy distributions of the proton fragments dissociated from  $H_2^+$  molecules are compared with the corresponding experimental spectrum [45]. Specifically, these energy distributions are calculated for incident  $H_2^+$  molecules with  $v = 2.026$  a.u. and exiting in the forward direction (i.e., at  $0^\circ$  angle with respect to the axis of incidence) after traversing a 360 a.u. thick aluminum foil, whose  $\epsilon(k, \omega)$  has been calculated in Refs. [10,11]. These velocities are chosen because the fraction  $\Phi_0$  of hydrogen atoms in the dissociated fragments is high enough,  $\Phi_0 \approx 20\%$  [34], to observe the vicinage force effects of this species.

We represent in Fig. 4 the experimental data [45] by symbols while the set of histograms pertain to simulations with different values of the neutral charge fraction  $\Phi_0$ , as indicated. All distributions are normalized to unit area.

It can be seen from the simulations that if the neutral charge fraction is zero,  $\Phi_0 = 0$  (i.e., the two fragments are protons), two peaks are obtained in the energy distributions, which correspond to the protons that are retarded or accelerated due to the Coulomb repulsion. Also a difference in height of these two peaks is observed due to the alignment effect of vicinage forces between the protons. However the

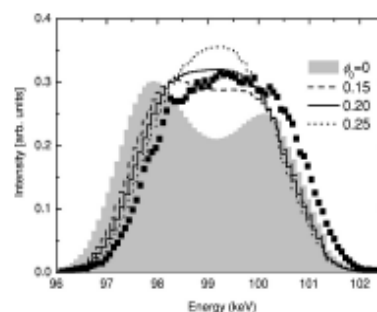


FIG. 4. Energy spectrum at zero exit angle of proton fragments of  $H_3^+$  molecules after traversing a 360 a.u. thick aluminum foil, together with the experimental data [45] (symbols). The incident molecule velocity is 2.026 a.u. The four simulation histograms correspond to different values of the neutral charge fraction  $\Phi_0$ .

experimental distribution does not show the double-peak structure obtained from the simulation in the  $\Phi_0 = 0$  case, which means that  $\Phi_0$  has a strong influence on the energy distribution of the  $H^+$  fragments.

When the neutral charge fraction is increased in simulations, the path fraction in which both fragments travel as  $H^+$  diminishes and so the action of the Coulomb repulsion is reduced, leading to a narrower energy distribution as it is observed in Fig. 4. Also there is an increase of those particles that did not experience repulsion at all, increasing the central region of the energy distributions [19,22,46,47]. Finally one can see that the peak height difference diminishes due to the fact that vicinage force effects for neutrals are lower than for protons. From these simulations it seems apparent that a neutral fraction  $\Phi_0 \approx 20\%$  provides the best agreement with the data, in accordance with the neutral fraction found in experiments [34], and part of this agreement is due to the inclusion of the vicinage forces of the hydrogen atoms in our calculations.

##### B. Vicinage force effects in energy distributions of $H_2^+$ ions

To study the vicinage force effects in the case of  $H_2^+$  ions, the experimental energy spectrum of  $H_2^+$  ions resulting from the dissociation of the  $H_3^+$  ions is discussed in what follows.

Figure 5 displays the experimental energy spectrum [48] (symbols) of  $H_2^+$  ions that exit a 172 a.u. thick amorphous carbon foil in the forward direction. The  $H_2^+$  ions are created by fragmentation of a  $H_3^+$  ion beam incident with an initial velocity  $v = 5.42$  a.u. The energy spectrum shows three peaks: the two external (and greater) peaks are the result of the Coulomb repulsion between dissociated positive pair fragments,  $H_2^+ + H^+$ , while the smaller central peak is due to the lack of this repulsion between the dissociated pair fragments  $H_2^+ + H^0$ .



M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCÍA-MOLINA

PHYSICAL REVIEW A 68, 062902 (2003)

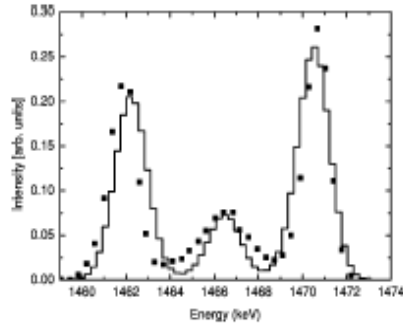


FIG. 5. Energy spectrum at zero exit angle of  $H_2^+$  ions transmitted through a 172 a.u. thick amorphous carbon foil, dissociated from  $H_3^+$  ions incident with 5.42 a.u. velocity. Symbols represent experimental results [48] and the histogram is our calculation.

The most outstanding feature in these Coulomb peaks is that the lower-energy peak is smaller than the higher-energy peak, opposed to what is seen in the energy spectrum of the atomic fragment, Fig. 4. This feature was pointed out by Cue *et al.* [48], as due to an asymmetric destruction process of  $H_2^+$  ions in the solid; these authors explained that as  $H_2^+$  ion destruction is mainly due to the interactions with target valence electrons, the larger target electron density induced behind a leading positive charge suppresses an increased probability for trailing  $H_2^+$  ion destruction, which results in a less intense lower-energy peak.

To check the arguments by Cue *et al.*, we have compared in Fig. 5 our simulation results (full line) with their experimental data (symbols), obtaining a good agreement with experiments, in particular concerning the asymmetry of the Coulomb peaks. This result has been obtained without introducing any  $H_2^+$  destruction increasing factor induced by the neighbor positive charge. Thus other effects have to be analyzed.

The asymmetry of the Coulomb peaks could be due to the fact that electronic stopping per amu ( $S_{ex}=S_e/m$ ) of the  $H_2^+$  ion is smaller than the one of  $H^+$ :  $S_{exH_2^+}/S_{exH^+}=0.77$  for this specific velocity [36,37]. So after the  $H_2^+$  +  $H^+$  dissociation, the  $H_2^+$  velocity will become larger than the  $H^+$  one and  $H_2^+$  ions will travel in front of its  $H^+$  partner resulting in an extra accumulation of  $H_2^+$  ions at the higher energies. This effect can be estimated in our simulation code by putting the electronic stopping per amu of  $H^+$  ions equal to the  $H_2^+$  value in the  $H_2^+$  +  $H^+$  dissociation. From the result depicted in Fig. 6(a) (full line), we see that the height asymmetry of the Coulomb peaks has decreased compared to the former simulation, Fig. 6(a) (shadow histograms), but has not disappeared; so the electronic stopping influences the peak asymmetry but it is not the only responsible.

Another cause could be due to the  $H_2^+$  -  $H^+$  vicinage force commented in Sec. II B. We calculated the energy distribu-

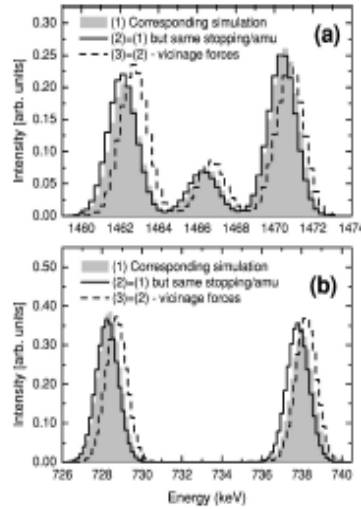


FIG. 6. Simulations of the dissociated fragments energy spectra for the experiment of Ref. [48]. The shadow histograms correspond to the complete simulation (Fig. 5); full line histograms were obtained using the same stopping per amu for all fragments; dashed line histograms are the same as full line ones but without using vicinage forces. (a)  $H_2^+$  energy spectrum and (b)  $H^+$  energy spectrum.

tion of  $H_2^+$ , putting the stopping per amu of  $H^+$  ions equal to the value for  $H_2^+$  but without considering  $H_2^+$  -  $H^+$  vicinage force. Now Fig. 6(a) (dashed line) shows that the height difference between Coulomb peaks totally disappears, so vicinage force makes an additional contribution to the asymmetry. The fact that the  $H_2^+$  -  $H^+$  vicinage force effects are opposite to the  $H^+$  -  $H^+$  vicinage force effects is due to the difference in mass of the two particles resulting in the  $H_2^+$  +  $H^+$  dissociation. The vicinage force tends to align more efficiently the lighter particle behind the heavier one. This feature can be seen in the energy spectrum of the dissociated protons, Fig. 6(b). When we calculate the  $H^+$  energy distribution putting  $H^+$  stopping per amu equal to the  $H_2^+$  value (full line), we see that vicinage forces produce a height difference in Coulomb peaks opposed to the height difference seen in the  $H_2^+$  energy spectrum.

To sum up, the height asymmetry in Coulomb peaks of the energy spectra of different fragments from dissociated molecular ions is due to different electronic stopping per amu of the fragments and also due to the vicinage forces between them, because they produce different alignment depending on the fragment relative masses.

## V. CONCLUSIONS

Vicinage forces for the cases  $H^+$  -  $H^+$ ,  $H^+$  -  $H^0$ ,  $H^0$  -  $H^0$ , and  $H_2^+$  -  $H^+$  have been calculated using the dielectric formalism

## VICINAGE FORCES BETWEEN MOLECULAR IONS...

PHYSICAL REVIEW A 68, 062902 (2003)

and an energy-loss function developed by our group that describes properly the electronic stopping of the target material.

Vicinage forces tend to align the dissociated fragments from the molecular ions in the beam direction. This effect is shown clearly in the asymmetric heights of the Coulomb peaks that appear in the energy spectra of the dissociated fragments from the  $H_2^+$  or  $H_3^+$  molecules. This has been seen in  $H^+$  energy distributions exiting at zero angle from the dissociation of  $H_2^+$  ions, this asymmetry decreases when the fraction of  $H^0$  is included in the simulation code calculation confirming that  $H^+-H^+$  and  $H^+-H^0$  vicinage forces are smaller than  $H^+-H^+$  ones, and also confirming that these vicinage forces have to be taken into account to obtain the same results as the experimental ones.

Also the  $H_2^+$  energy spectrum resulting from  $H_3^+$  ions

presents an asymmetry in the height of the Coulomb peaks but opposite to the one found in the later case. It has been demonstrated that the opposed asymmetry is due to two effects; the first one is that  $H_2^+$  ions have smaller electronic stopping per atom than their proton dissociated partners, and the second one is that vicinage forces align more efficiently lighter particles behind heavier ones.

## ACKNOWLEDGMENTS

This work was financed by the Spanish Ministerio de Ciencia y Tecnología (through Project No. BFM200-1050-C02-01) and the Spanish Ministerio de Educación, Cultura y Deportes (through a grant to M.D.B.-C.). M.D.B.-C. thanks Fundación Séneca for financial support, and G. Maynard, C. Deutsch, and J. Barriga for fruitful discussions.

- [1] J. Remillieux, Nucl. Instrum. Methods 170, 31 (1980).
- [2] E. Fermi, Phys. Rev. 57, 485 (1940).
- [3] J. Lindhard, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 28, 8 (1954).
- [4] J. Lindhard and A. Winther, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 34, 8 (1963).
- [5] D. Penn, Phys. Rev. 125, 2093 (1962).
- [6] W. Brandt and J. Reinheimer, Phys. Rev. B 2, 3104 (1970).
- [7] J.P. Walter and M.L. Cohen, Phys. Rev. B 5, 3101 (1972).
- [8] R.H. Ritchie and A. Howie, Philos. Mag. 34, 463 (1977).
- [9] I. Abeil, R. Garcia-Molina, and N.R. Arista, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 80, 72 (1994).
- [10] D.J. Planes, R. Garcia-Molina, I. Abeil, and N.R. Arista, J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom. 82, 23 (1996).
- [11] I. Abeil, R. Garcia-Molina, C.D. Denton, F.J. Pérez-Pérez, and N.R. Arista, Phys. Rev. A 58, 357 (1998).
- [12] J.C. Moreno-Marín, I. Abeil, and R. Garcia-Molina, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 195, 30 (2002).
- [13] N.D. Memm, Phys. Rev. B 1, 2362 (1970).
- [14] N.R. Arista, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 144, 108 (2000).
- [15] S. Heredia-Avalos, R. Garcia-Molina, and N.R. Arista, Europhys. Lett. 54, 729 (2001).
- [16] Z.L. Miskovic, S.G. Davison, F.O. Goodman, W.K. Liu, and Y.N. Wang, Phys. Rev. A 63, 022901 (2001).
- [17] C.D. Denton, M.D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, K. Kimura, I. Abeil, and N. R. Arista (unpublished).
- [18] R. Garcia-Molina, S. Heredia-Avalos, and I. Abeil, J. Phys.: Condens. Matter 12, 5519 (2000).
- [19] R. Laubert and F.K. Chen, Phys. Rev. Lett. 40, 174 (1978).
- [20] M.J. Gaillard, D.S. Gemmell, G. Goldring, I. Levine, W.J. Pietsch, J.C. Poizat, A.J. Ratkowski, J. Remillieux, Z. Vager, and B.J. Zabramsky, Phys. Rev. A 17, 1797 (1978).
- [21] D.S. Gemmell, Chem. Rev. (Washington, D.C.) 80, 301 (1980).
- [22] W.P. Pietsch, D.S. Gemmell, P.J. Cooney, E.P. Kanter, D. Kurath, A.J. Ratkowski, Z. Vager, and B.J. Zabramsky, Nucl. Instrum. Methods 170, 61 (1980).
- [23] J. Cooney, D.S. Gemmell, E.P. Kanter, W.J. Pietsch, and B.J. Zabramsky, Nucl. Instrum. Methods 170, 73 (1980).
- [24] G.J. Kumbartzki, H. Neubauer, H.-P. Kohl, and W. Polster, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. 194, 291 (1982).
- [25] R. Garcia-Molina, C.D. Denton, I. Abeil, and N.R. Arista, Phys. Rev. A 62, 012901 (2000).
- [26] C.D. Denton, R. Garcia-Molina, I. Abeil, and N.R. Arista, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 135, 45 (1998).
- [27] C.D. Denton, R. Garcia-Molina, I. Abeil, and N.R. Arista, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 135, 50 (1998).
- [28] R. Garcia-Molina, I. Abeil, C.D. Denton, and N.R. Arista, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 184-185, 310 (2000).
- [29] R. Garcia-Molina, C.D. Denton, F.J. Pérez-Pérez, I. Abeil, and N.R. Arista, Phys. Status Solidi B 218, 23 (2000).
- [30] L.D. Landau and E.M. Lifshitz, *Electrodynamics of Continuous Media* (Pergamon, Oxford, 1960).
- [31] J.A. Phillips, Phys. Rev. 97, 404 (1955).
- [32] S.K. Allison, Rev. Mod. Phys. 30, 1137 (1958).
- [33] S. Kreuzer and R. Sizmann, Phys. Rev. B 24, 520 (1982).
- [34] N.V. de Castro Faria, F.L. Freire, Jr., E.C. Montenegro, and A.G. De Pinho, J. Phys. B 19, 1781 (1986).
- [35] M. Farizon, N.V. de Castro Faria, B. Farizon Mazuy, and M.J. Gaillard, Phys. Rev. A 55, 335 (1997).
- [36] T. Kaneko, Phys. Rev. A 51, 535 (1995).
- [37] M.D. Barriga-Carrasco, Ph.D. thesis, Universidad de Murcia, 2002 (unpublished).
- [38] N. Cue, N.V. de Castro Faria, M.J. Gaillard, J.C. Poizat, and J. Remillieux, Nucl. Instrum. Methods 170, 67 (1980).
- [39] Y. Suzuki, M. Fritz, K. Kimura, M. Mannami, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, and H. Ikegami, Phys. Rev. A 50, 3533 (1994).
- [40] N. Cue, N.V. de Castro Faria, M.J. Gaillard, J.C. Poizat, and J. Remillieux, Phys. Lett. 72A, 104 (1979).
- [41] Y. Suzuki, M. Fritz, K. Kimura, M. Mannami, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, and H. Ikegami, Phys. Rev. A 51, 3868 (1995).
- [42] W. Müller, G. Pospiech, and G. Schrieder, Nucl. Instrum. Methods 130, 265 (1975).
- [43] M. Nastasi, J.W. Mayer, and J.K. Hirvonen, *Ion-Solid Interac-*

M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCIA-MOLINA

PHYSICAL REVIEW A **68**, 062902 (2003)

*now* (Cambridge University Press, Cambridge, 1996).

- [44] W.L. Walten, D.G. Costello, J.G. Skofronick, D.W. Palmer, W.E. Kane, and R.G. Herb, *Phys. Rev.* **125**, 2012 (1962).
- [45] C.D. Denton, I. Abril, M.D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, G.H. Lantchnier, J.C. Eckardt, and N.R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **193**, 198 (2002).
- [46] E.P. Kanter, P.J. Cooney, D.S. Gemmell, K.-O. Groeneveld,

W.J. Fietzsch, A.J. Ratkowski, Z. Vager, and B.J. Zabramny, *Phys. Rev. A* **20**, 834 (1979).

- [47] T.R. Fox, K. Lam, and R. Levi-Setti, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* **194**, 285 (1982).
- [48] N. Cue, M.J. Gaillard, J.C. Poizat, J. Remillieux, and J.L. Subtil, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 959 (1979).

PHYSICAL REVIEW A 70, 032901 (2004)

Simulation of the energy spectra of original versus recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin foils

Mamuel D. Barriga-Carrasco and Rafael Garcia-Molina

Departamento de Física, Universidad de Murcia, Apartado 4021, E-30080 Murcia, Spain

(Received 24 February 2004; published 9 September 2004)

This work presents the results of computer simulations for the energy spectra of original versus recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin amorphous carbon foils, for a broad range of incident energies. A detailed description of the projectile motion through the target has been done, including nuclear scattering and Coulomb repulsion as well as electronic self-retarding and wake forces; the two latter are calculated in the dielectric formalism framework. Differences in the energy spectra of recombined and original transmitted  $H_2^+$  molecular ions clearly appear in the simulations, in agreement with the available experimental data. Our simulation code also differentiates the contributions due to original and to recombined  $H_2^+$  molecular ions when the energy spectra contain both contributions, a feature that could be used for experimental purposes in estimating the ratio between the number of original and recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin foils.

DOI: 10.1103/PhysRevA.70.032901

PACS number(s): 34.50.Bw, 36.40.-c, 79.20.Rf

## I. INTRODUCTION

The interest in the study of  $H_2^+$  molecular ions interacting with thin foils is because  $H_2^+$  is the simplest molecular projectile. It is known that the  $H_2^+$  ion is composed of two protons (separated by a distance  $R$ ) and a bound electron. When the ion interacts with the foil it travels during a certain time without being dissociated until it loses its bound electron [1], resulting in two protons with a certain space configuration; the elapsed time until it loses its bound electron is called the lifetime of the molecular ion. Sometimes, depending on the initial projectile velocity and on the foil thickness, the molecular ion travels through the foil without being dissociated; this is known as original transmission. The most common thing, at the energies studied in the present work, is that the molecular ion leaves the foil dissociated into the protons that form it, a process called dissociation. But it can happen that the two dissociated protons capture an electron at the exit of the foil [2,3] and recombine to form a  $H_2^+$  ion again; this is said to be recombined to distinguish it from the original transmitted  $H_2^+$  ion.

Original and recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin carbon foils were first identified by Poinat and Ramillieux in 1971 [4]. Subsequent measurements of high-energy molecular ion yield versus target thickness by Ramillieux and co-workers [2,4–7] and others [8] have demonstrated the existence of two regimes: one corresponding to a rapid decrease of the molecular ion yield with target thickness for very short dwell times, and the other showing a slower decrease of the molecular ion transmission yield for longer dwell times. There is strong evidence that the short dwell time regime represents transmission of the original molecule; for longer dwell times, this transmission probability is negligible, and the detected molecular ions apparently result from recombination of the protons dissociated from the incident  $H_2^+$  molecular ion. Gaillard *et al.* [2] thought that the recombination probability should depend on the probability for electron capture and on the internuclear separation at the exit surface, which has also been shown in a recent work [3].

When the  $H_2^+$  molecular ion arrives at the target, it interacts both with the electrons and with the nuclei of the target. Before dissociating, the  $H_2^+$  ion experiences a stopping force mainly due to the target electrons and a scattering force due to the target nuclei. When it dissociates, its fragments also experience the same forces plus other forces resulting from the close proximity of their partner fragments; namely, they induce a wake electric field in the target electronic medium, affecting the motion of their partners. In addition, when both fragments are charged they mutually repel through Coulomb forces. Finally, in order to take into account the  $H_2^+$  recombination process, we include in the simulations the possibility that the dissociated fragments can capture or lose electrons.

For comparison purposes, in Sec. II we calculate theoretically the electronic stopping of the original and recombined transmitted  $H_2^+$  ions. In Sec. III we present the basic ingredients of our computer calculations, whose results are compared with available experimental data in Sec. IV. The conclusions of this work appear in Sec. V. In what follows we will use atomic units, except where otherwise stated.

II. ELECTRONIC STOPPING OF THE  $H_2^+$  MOLECULAR ION

Energy loss due to electronic excitations in the foil is the main contribution to the stopping of a swift projectile at the energies considered in this work. The interactions of the pro-

M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCÍA-MOLINA

jectile with the electrons of the material will be described in the framework of the dielectric formalism, which accounts for the response of the electronic medium to external perturbation through the dielectric function  $\epsilon(k, \omega)$ , where  $k$  and  $\omega$  are the modulus of the momentum and the energy, respectively, transferred to the electronic excitations of the target.

We use in this work a linear combination of the energy loss function  $\text{Im}[-1/\epsilon(k, \omega)]$ , for the external electron excitations, which is obtained from the dielectric function proposed by Mermin [9], and a generalized oscillator strength hydrogenlike approach for internal electron excitations [10,11]. With this procedure the optical properties and the energy loss spectra of real materials are properly described for the purposes of swift charged projectile energy loss calculations.

The electronic stopping for a charge density  $\rho(r, t)$  traveling with a constant velocity  $v$  through a solid whose energy loss function is  $\text{Im}[-1/\epsilon(k, \omega)]$ , is

$$S_e = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \rho^2(k) \text{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right], \quad (1)$$

where  $\rho(k)$  is the Fourier transform of the projectile charge density.

As the electronic stopping is a statistical process, it is convenient to define the "straggling," which is the variance of the projectile energy loss per unit path length:

$$\Omega^2 = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty \frac{dk}{k} \int_0^{kv} d\omega \omega^2 \rho^2(k) \text{Im} \left[ \frac{-1}{\epsilon(k, \omega)} \right]. \quad (2)$$

The charge density of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion can be written as

$$\rho(r, t) = Z_1 \delta(r - vt - R/2) + Z_2 \delta(r - vt + R/2) - \rho_M(r - vt), \quad (3)$$

where  $Z_1=1$  is the charge of the proton,  $R$  is the internuclear vector between protons,  $v$  is the velocity of the  $\text{H}_2^+$  projectile, and  $\rho_M$  is the electronic density of the molecular ion.

We assume in this work that the electronic density  $\rho_M$  is that of the ground molecular level  $\sigma_g$  1s. It is known that the exact electronic wave function of this ground level is an infinite series of Legendre associated functions; the corresponding potential energy has a minimum at  $R_{\text{min}} = 1.9972 \text{ a.u.}$  with a value  $U(R_{\text{min}}) = -0.6026 \text{ a.u.}$  [12]. But the difficult handling of these functions opens the door to simpler models for the electron wave function of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion. The Gaussian model [13], which has proved to be simple and useful [14], gives the following wave function:

$$\phi_d(r) = N_G [\varphi_G(r - R/2) + \varphi_G(r + R/2)], \quad (4)$$

where  $\varphi_G(r)$  is the normalized Gaussian wave function

$$\varphi_G(r) = \left( \frac{2\alpha}{\pi} \right)^{3/4} \exp(-\alpha r^2), \quad (5)$$

$\alpha = 0.43 \text{ a.u.}$  is the orbital parameter, and  $N_G$  is the normalization factor for this molecular orbital:

PHYSICAL REVIEW A 70, 032901 (2004)

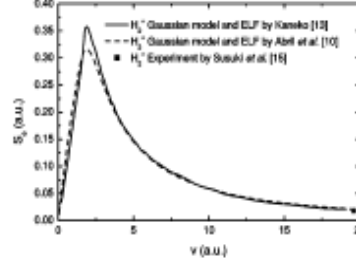


FIG. 1. Electronic stopping of amorphous carbon for  $\text{H}_2^+$ , as a function of its velocity. The calculations were done using the Gaussian model with the energy loss function proposed by Kaneko [13] (solid line) and with the energy loss function appearing in Abril *et al.* [10] (dashed line). The symbol ■ represents the experimental result of Suzuki *et al.* [15].

$$N_G = \left\{ \frac{1}{2[1 + \exp(-\alpha R^2/2)]} \right\}^{1/2}. \quad (6)$$

The variational method [13] gives  $U(R_{\text{min}}) = -0.5031 \text{ a.u.}$  and  $R_{\text{min}} = 2.05 \text{ a.u.}$  for the minimum of potential and its corresponding internuclear distance, respectively, both values being quite close to the exact results.

To calculate the stopping power and the straggling for a beam of  $\text{H}_2^+$  molecular ions incident with random orientation on the target, we substitute  $\rho^2(k)$  in Eqs. (1) and (2) by the square of the Fourier transform of the charge density of the molecular ion and average it for all possible angles between  $k$  and  $R$ , which gives

$$\begin{aligned} \langle \rho_{\text{en}}^2(k) \rangle_{\text{avg}} &= A^2(k) \frac{1}{2} \left[ 1 + \frac{\sin(kR)}{kR} \right] + B^2(k) \\ &\quad - 2A(k)B(k) \frac{\sin(kR/2)}{kR/2}, \end{aligned} \quad (7)$$

where

$$A(k) = 2Z_1 - C(k),$$

$$B(k) = e^{-\alpha R^2/2} C(k),$$

and

$$C(k) = e^{-k^2/3\alpha} [1 + \exp(-\alpha R^2/2)].$$

We compare in Fig. 1 the electronic stopping of a carbon target for the  $\text{H}_2^+$  molecular ion, calculated with our energy loss function [10,11] or with the one used by Kaneko [13], in both cases using a Gaussian model for the electronic molecular orbital. One experimental result is depicted for high velocity ( $v = 19.6 \text{ a.u.}$  [15]), i.e., small dwell times, which corresponds to the case of original transmitted molecules.

On the other hand, the energy loss of a recombined  $\text{H}_2^+$  molecular ion is similar, except for vicinage effects, to the energy lost by two protons traveling together in an uncorre-



SIMULATION OF THE ENERGY SPECTRA OF...

PHYSICAL REVIEW A 70, 032901 (2004)

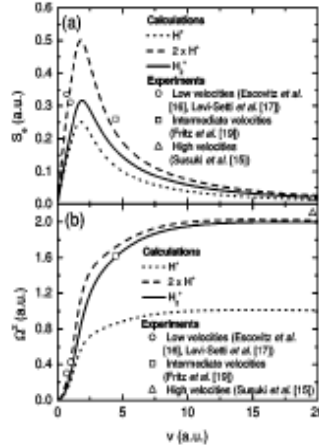


FIG. 2. (a) Electronic stopping and (b) electronic straggling of amorphous carbon for the  $H_2^+$  molecular ion as a function of its velocity, using the Gaussian model (solid line); the corresponding results for  $H^+$  and twice  $H^+$  are represented by dotted and dashed lines, respectively. The symbols represent experimental results [15–17,19] for the different energy regions discussed in detail in Sec. IV.

lated manner, which is twice the energy lost by one proton:

$$\Delta E(H_2^+ \rightarrow H_{2\text{recomb}}^+) \approx 2[\Delta E(H^+ \rightarrow H^+)]. \quad (8)$$

The same holds with the straggling:

$$\Omega^2(H_2^+ \rightarrow H_{2\text{recomb}}^+) \approx 2[\Omega^2(H^+ \rightarrow H^+)]. \quad (9)$$

In Figs. 2(a) and 2(b) we have depicted the electronic stopping and straggling, respectively, obtained here for the original transmitted  $H_2^+$  molecular ion and for twice the corresponding values for a single proton. The calculations for the original transmitted  $H_2^+$  agree with experiments [15] only at high energy, but clearly differ from the available experimental data for the low- [16–18] and intermediate- [19] energy regions. A computer simulation, described in what follows, will help us to understand the behavior of the energy loss of the transmitted  $H_2^+$  in the whole range of incident energies.

### III. COMPUTER SIMULATIONS

The numerical code we have used to follow the trajectories of the  $H_2^+$  molecular ions has been described elsewhere [14,20]. Here we summarize its main points.

Inside the target the  $H_2^+$  molecular ion first moves nondissociated and, after a brief time, it breaks into its constituent fragments. The time moving nondissociated is drawn from the lifetime of the  $H_2^+$  molecular ion in carbon, 0.23 fs [15]; during the motion of the molecular ion as a whole its

interactions with the target are different from those that take place when the molecule is dissociated. Nondissociated molecular ions are supposed to experience the same interactions as an atomic projectile [3], suffering (i) the electronic stopping force and (ii) collisions with the target nuclei. The calculation of the electronic stopping force was presented in the previous section; nuclear collisions are taken into account by adapting a Monte Carlo algorithm developed by Möller *et al.* [21] to describe the classical theory of the dispersion using a Thomas-Fermi Coulomb screened potential with a universal screening distance [22,23].

When the incident molecular ion dissociates into its constituent protons, each one is subjected individually to the same types of atomic interactions (i) and (ii), plus other interactions related to the correlated motion of its fragment partner, namely, (iii) the Coulomb repulsion, when both dissociation fragments are charged, and (iv) the wake force, due to the electronic excitations induced in the target by the partner fragment. Coherent scattering is not taken into account because it was shown to represent a small correction in this energy range [24].

The wake force produced by a fragment (with charge density  $\rho_1$ ) on the other fragment (with charge density  $\rho_2$ ) at the relative position given by the cylindrical coordinates  $(z, r)$  is calculated using the same dielectric formalism as for the stopping force [14]. The components of this force parallel and perpendicular to the motion of a fragment with charge density  $\rho_1$  are

$$F_z(z, r) = \frac{2}{\pi v^2} \int_0^\infty dk \frac{\rho_1(k) \rho_2(k)}{k} \int_0^h d\omega J_0(r \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \times \left\{ \sin\left(\frac{\omega z}{v}\right) \text{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] + \cos\left(\frac{\omega z}{v}\right) \text{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\} \quad (10)$$

and

$$F_r(z, r) = \frac{2}{\pi v} \int_0^\infty dk \frac{\rho_1(k) \rho_2(k)}{k} \int_0^h d\omega \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2} \times J_1(r \sqrt{k^2 - \omega^2/v^2}) \times \left\{ \cos\left(\frac{\omega z}{v}\right) \text{Re} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] - \sin\left(\frac{\omega z}{v}\right) \text{Im} \left[ \frac{1}{\epsilon(k, \omega)} - 1 \right] \right\}, \quad (11)$$

where  $J_0(\dots)$  and  $J_1(\dots)$  are Bessel functions of the first kind.

The initial geometry of the incident  $H_2^+$  molecular ion must be taken into account because the forces between fragments depend on the internuclear distance as well as on the orientation of the internuclear axis with respect to the beam direction. The initial internuclear distance is taken from a distribution theoretically calculated using the Franck-Condon principle [25]; the initial molecular orientation is obtained from a random draw of Euler angles [26].

The simulation code uses a standard molecular dynamics method to follow the evolution of a system of one (the non-

dissociated molecular ion) or several particles (i.e., the fragments), using a numerical integration of Newton equations. The possibility that the fragments can capture or lose an electron inside the foil is also considered in a simple way, in order to account for the recombination process. The  $H^+$  fraction is negligible in the energy range studied here [27,28] and so only  $H^+$  and  $H^0$  fragments will be considered:

$$\rho(k) = \begin{cases} 1 & \text{for } H^+ \\ 1 - \frac{1}{[1 + (k/2)^2]^2} & \text{for } H^0. \end{cases} \quad (12)$$

To implement the electron capture or loss process in the computer code, the charge state of each fragment has been assigned at each time step according to the equilibrium charge fraction corresponding to its velocity [27,28]. Nuclear collisions suffered by the dissociated fragments are insensitive to their charge state, behaving like protons for these types of collisions. The stopping force acting on a fragment depends on its charge state, but the wake force depends on the charge state of both interacting fragments. Finally, Coulomb repulsion takes place only when both fragments are protons; this interaction is also considered outside the foil because repulsion inside the target is not complete, especially at the highest fragment velocities. The trajectories are calculated until each projectile reaches a simulated detector, characterized by an angular acceptance that takes into account the effects of finite resolution.

The computer code also considers that, once the fragments reach the exit surface of the foil, molecular recombination can take place only when one electron is captured by one of the two fragment protons, and the system (two protons and the captured electron) forms a bound state of the  $H_2^+$  molecular ion. In order for the system to be bound, its internal energy should be smaller than the maximum of the ion effective potential energy for dissociation, i.e.,

$$E_{\text{int}} < U_{\text{eff,max}}(R, v_{\text{rel}}) \Rightarrow \text{recombination}, \quad (13)$$

$$E_{\text{int}} > U_{\text{eff,max}}(R, v_{\text{rel}}) \Rightarrow \text{no recombination}. \quad (14)$$

In this work, we consider that the recombination happens only for the  $\sigma_g^{1s}$  electronic state (or fundamental electronic state of the  $H_2^+$  molecular ion) so the effective potential energy will correspond to this fundamental state. The internal energy of the system is given by the relative kinetic energy and the  $H_2^+$  dissociation effective potential energy for the  $\sigma_g^{1s}$  electronic state,  $U_{\text{eff}}$ , which depends on the distance  $R$  and on the relative velocity  $v_{\text{rel}}$  between the two protons:

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2}\mu v_{\text{rel}}^2 + U_{\text{eff}}(R, v_{\text{rel}}) = \frac{1}{2}\mu v_{\text{rel}}^2 + U(R) - \frac{L^2}{2\mu R^2}, \quad (15)$$

where  $U(R)$  is the  $H_2^+$  dissociation potential from [29],  $\mu$  is the reduced mass of the system, and  $L = \mu R \times v_{\text{rel}}$  is the relative angular momentum of the system. Also, the value of the internuclear distance  $R$  must be comprised between the values of the classic turning points of the effective potential well  $U_{\text{eff}}$ .

To recombine the  $H_2^+$  ion in our simulation code, first of all we need the particles that form the  $H_2^+$  ion: the two protons and the electron. The latter is captured from the electronic medium of the target material taking into account the possibility of a two-individual-proton electronic capture. We have considered this capture at the exit surface of the foil also, as this is more probable since the electron attraction by the two protons is not screened by the material electrons. Our code allows us to know the coordinates and the velocity of each dissociated proton at any instant, and therefore we can know the relative magnitudes  $R$ ,  $v_{\text{rel}}$ , and  $L$  at the exit of the foil. Knowing these values, it is possible to calculate the internal energy as well as the maximum of the dissociation effective potential energy in order to decide if the  $H_2^+$  recombination happens.

#### IV. RESULTS

The energy spectra of the  $H_2^+$  molecular ions transmitted through amorphous carbon foils were obtained using the previously described code, and they will be compared with the available experimental data according to the  $H_2^+$  incident energies: low [16–18], intermediate [19], and high energies [15].

##### A. Low energies

The experiments performed in Refs. [16–18] studied the transit of  $H_2^+$  molecular ions with  $v \approx 1.00$  a.u. ( $\approx 50$  keV). At these low incident velocities, very thin foils were needed to detect original transmitted  $H_2^+$  molecular ions. Also at these velocities, the number of transmitted  $H_2^+$  molecular ions formed after recombination is very high, because the probability that the proton fragments capture an electron and become a hydrogen atom is also high ( $\approx 70\%$ ), and molecular recombination depends directly on this electron capture by the exiting proton fragments [3].

Figure 3 shows simulated and experimental energy distributions for different incident  $H_2^+$  velocities and for different foil thicknesses. Our code can distinguish between the energy spectra of the original and recombined transmitted  $H_2^+$  molecular ions. It can be seen that almost all the  $H_2^+$  ions experimentally detected are recombined ones. The number of recombined and original molecular ions decreases with increasing dwell time, but the recombination process dominates for larger dwell times (i.e., low energies) [3]. Recombined molecular ions are characterized by a mean energy loss and a width in the energy distribution that is larger than that for the original transmitted ones, as is expected according to the discussion in Sec. II.

Moreover, it can be seen that the number of recombined molecular ions is independent of the dissociated fragment energy before they recombine, as all energy distributions are practically symmetric around a mean value. The small asymmetry at low spectrum energies is due to particles that suffer few nuclear collisions during their travel through the foil; this is demonstrated when this asymmetry disappears as the energy of the incident particle increases. This feature is more remarkable for the experimental distributions. The sums of

SIMULATION OF THE ENERGY SPECTRA OF...

PHYSICAL REVIEW A 70, 032901 (2004)

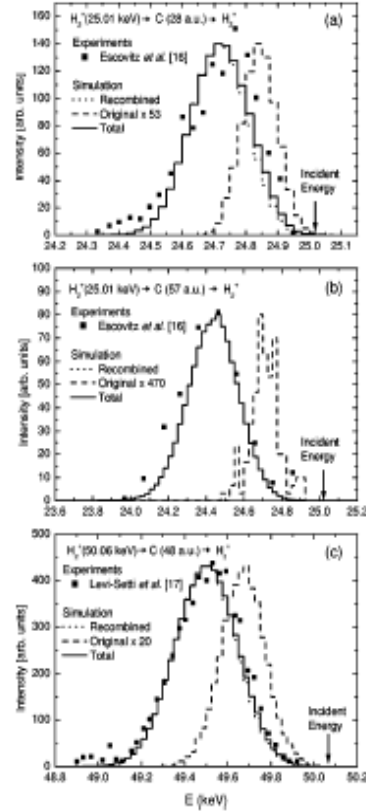


FIG. 3. Energy distributions of  $H_2^+$  molecular ions transmitted through amorphous carbon foils and detected at all angles, for different incident energies ( $E$ ) and target thicknesses ( $D$ ). (a)  $E = 25.01$  keV,  $D = 28$  a.u., (b)  $E = 25.01$  keV,  $D = 57$  a.u., and (c)  $E = 50.06$  keV,  $D = 48$  a.u. Simulated spectra for transmitted  $H_2^+$  molecular ions after recombination (dotted line), original ones (dashed lines, enlarged (a) 53, (b) 470, and (c) 20 times) and the sum of both (solid line) are compared with experimental results [16,17]. Note that in (b) the dotted line is hidden beneath the solid one.

the simulated energy distributions for the original and recombined molecular ions are depicted by continuous lines in Fig. 3 and agree quite well with the distributions obtained experimentally.

Also, from the spectra shown in Fig. 3 we can obtain the experimental stopping and straggling, which can be compared with our calculations in Sec. II. The experimental stopping is the difference between the incident energy and the mean value of the energy distribution, divided by the foil

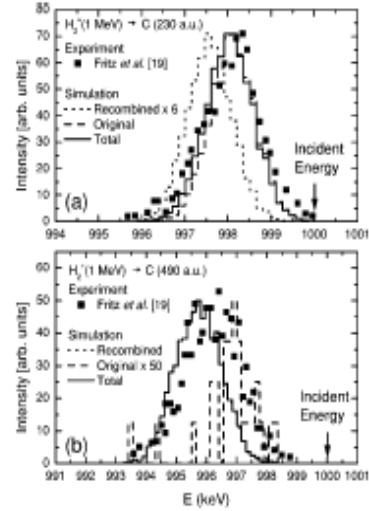


FIG. 4. Energy spectra of  $H_2^+$  molecular ions transmitted through amorphous carbon foils of thickness (a) 230 and (b) 490 a.u. The incident beam energy is 1 MeV ( $v = 4.47$  a.u.). Our simulations are compared with experimental results by Fritz *et al.* [19]; recombined ions [dotted line, (a) enlarged six times], original ions [dashed line, (b) enlarged 50 times], and total ions (solid line). In (b), the dotted line practically coincides with the solid one.

thickness ( $D$ ). The straggling is related to the square of the full width at half maximum of the energy distribution through

$$\Omega^2 = \frac{N_F^2 \text{WHM}}{D \sqrt{S} \ln 2} \quad (16)$$

The values  $S_0 = 0.34 \pm 0.01$  a.u. and  $\Omega^2 = 0.30 \pm 0.01$  a.u. are obtained from Figs. 3(a) and 3(b); whereas  $S_0 = 0.31 \pm 0.01$  a.u. and  $\Omega^2 = 0.43 \pm 0.01$  a.u. result from Fig. 3(c). If these values are put on the theoretical Fig. 2, it is noticed that these data are more similar to twice the proton values (characteristic of a recombination process) than to the  $H_2^+$  theoretical values (characteristic of an original transmission). This means that in these experiments most of the transmitted  $H_2^+$  molecular ions result from recombination of their fragments.

#### B. Intermediate energies

In the experiment by Fritz *et al.* [19], 1 MeV  $H_2^+$  molecular ions ( $v = 4.47$  a.u.) were sent through amorphous carbon foils with thicknesses in the range of 230 a.u. to 920 a.u. Figures 4(a) and 4(b) represent the final  $H_2^+$  energy distributions for the 230- a.u.- and 490- a.u.-thick foils, respectively, and clearly show how the spectra widen for the thicker tar-



M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCIA-MOLINA

PHYSICAL REVIEW A 70, 032901 (2004)

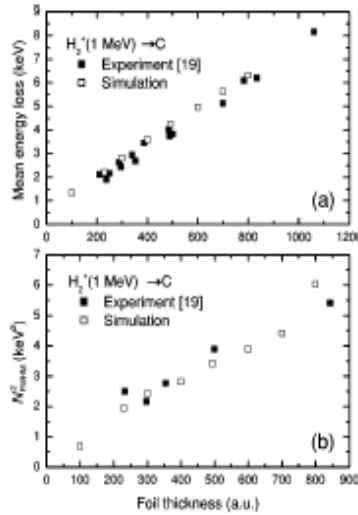


FIG. 5. (a) Mean value and (b)  $N_{FWHM}^2$  of the energy lost by  $H_2^+$  molecular ions transmitted through amorphous carbon foils, as a function of the foil thickness, for an incident 1 MeV  $H_2^+$  molecular ion beam. The experimental data by Feitz *et al.* [19] are shown by ■, the results obtained from our simulations of the energy distributions are represented by □.

get. Our simulations agree quite well with the experimental distributions.

For the thinner foil, Fig. 4(a), the number of original transmitted ions is greater than the number of recombined ones, because the shorter dwell times favor the transmission of original  $H_2^+$  molecular ions, and, in addition, the neutral fragment fraction (0.3%) [30] after  $H_2^+$  dissociation is much smaller at these energies than at low energies. On the other hand, for the thicker foil, Fig. 4(b), fewer original ions are transmitted and so the recombined yield is greater than the original one.

It is possible to obtain the mean energy loss as the difference between the incident energy and the mean energy of the energy distributions. In this way the mean energy loss for several foil thicknesses between 100 and 1100 a.u. has been calculated and represented in Fig. 5(a) together with the experimental results [19], showing an excellent agreement. The mean energy loss increases linearly with the foil thickness, the slope being  $S_0 = 0.260 \pm 0.006$  a.u. Putting this stopping value in Fig. 2(a), we see that it is rather close to twice the  $H^+$  stopping at the same velocity.

The energy straggling of the transmitted  $H_2^+$  molecular ions can also be obtained from the energy distributions. Figure 5(b) represents the square of the full width at half maximum ( $N_{FWHM}^2$ ) as a function of foil thickness. As in Fig. 5(a), our calculations compare quite well with experimental re-

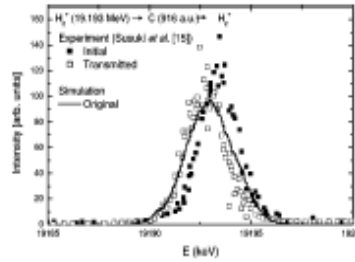


FIG. 6. Energy distribution of  $H_2^+$  transmitted through a 916-a.u.-thick amorphous carbon foil, for an incident beam energy of 19.193 MeV ( $v=19.6$  a.u.). The energy distribution of transmitted molecular ions obtained with our program (histogram) is compared with experimental results (■) [15], the experimental energy distribution of the incident beam (without the foil) is represented by □ [15].

sults [19].  $N_{FWHM}^2$  grows linearly with the foil thickness, obtaining the straggling value  $\Omega^2 = 1.5 \pm 0.4$  a.u. If this value is put in Fig. 2(b), it is seen that its error bar includes the value of twice the proton straggling. The value of  $N_{FWHM}^2$  at zero thickness agrees with the experimental width of the initial beam energy distribution,  $N_{FWHM}^2 = 1.3 \pm 0.7$  a.u. [19].

All together, our results lead us to conclude that for intermediate energies the recombination mechanism is the main process for thick foils, while the original transmission is the main process for thin foils.

### C. High energies

Finally, we discuss the experiment of Suzuki *et al.* [15], where the energy loss of 19.2 MeV  $H_2^+$  molecular ions ( $v=19.6$  a.u.) was measured at the exit of amorphous carbon foils with thicknesses ranging from 170 a.u. to 970 a.u.

As was mentioned before, our simulation program differentiates between original and recombined transmitted molecular ions, so it is possible to say if the experimentally detected ions are mostly originals or recombined ones just by analyzing the energy loss distributions. As an example, Fig. 6 shows the experimental and simulated energy distributions of  $H_2^+$  molecular ions transmitted through a 916-a.u.-thick amorphous carbon foil. Recombined molecular ions are not obtained in the simulation for this energy and for this foil thickness, which means that the experimentally detected molecular ions were overall original ones. The energy distribution of the incident beam is also shown in Fig. 6 for comparison purposes.

The stopping power is calculated from the experimental energy distribution in the same way as for low and intermediate energies, obtaining  $S_0 = 1.81 \pm 0.15 \times 10^{-3}$  a.u. Putting this result in Fig. 2(a), we notice that this value is closer to the electronic stopping power for  $H_2^+$  than to twice the electronic stopping power for a proton, just as would correspond to an original transmission process.

The value for the straggling obtained from the same experimental energy distribution is  $\Omega^2 = 2.1 \pm 0.3$  a.u., which is slightly larger than the theoretical result for the  $H_2^+$  molecular ion [Fig. 2(b)]; this is so because the energy distribution of the incident beam already has a considerable width,  $N_{FWHM}^E = 56.64 \pm 0.03 \times 10^3$  a.u., as Fig. 6 shows.

When depicting the energy loss spectra for the same incident energies but for different target thicknesses, it is seen that the thicker is the foil (i.e., for longer dwell times) the smaller is the detected number of original  $H_2^+$  molecular ions relative to the number of recombined ones. This is due to the finite lifetime in the foil of the molecular ion; therefore for longer dwell times fewer original molecular ions are transmitted. But we do not obtain the same ratio for different incident energies with similar dwell times ( $\sim 1$  fs) as in Figs. 3(a), 3(c), 4(a), and 6. At first glance, the ratio between the number of original transmitted molecular ions and the number of recombined ones increases with incident energy. This could be due to a dependence of the lifetime on the energy, but we have demonstrated recently [3] that it is the recombination yield that really depends on the energy, as electron capture diminishes with increasing energy.

#### V. CONCLUSIONS

The energy spectra of  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin carbon foils, as a function of the incident projectile energy and target thickness, have been simulated using a computer code that takes into account the main interactions experienced by the molecular ion and its dissociated fragments as they move through the solid. The electronic stopping for these ions was calculated theoretically using the dielectric formalism with an energy loss function that properly describes the electronic excitations of the target material, obtaining the result that the electronic stopping for the  $H_2^+$  molecular ion is smaller than twice the electronic stopping of an isotactic proton.

Two types of transmitted  $H_2^+$  molecular ions have been analyzed: original and recombined ones. To distinguish them, we have implemented in our simulation code the motion through the solid of the initially nondissociated  $H_2^+$  molecu-

lar ion during a short time and, after the dissociation takes place, the correlated motion of each pair of its dissociated fragments. We have considered that the projectiles experience the following interactions: stopping force, nuclear scattering, wake force, and Coulomb explosion, the two latter appearing only for the dissociated fragments. The possibility of electron capture or loss by these fragments has also been included in our simulation in order to consider the recombination of  $H_2^+$  molecular ions. The simulated energy spectra for original and recombined transmitted  $H_2^+$  molecular ions compare quite well with the experimental spectra.

In a previous paper [3] we discussed the transmission of original or recombined  $H_2^+$  molecular ions according to their dwell times in the foil. The results shown in the present work show that the original and recombined transmitted  $H_2^+$  molecular ions can also be distinguished by comparing their energy loss characteristics, derived from their energy spectra, with the energy loss calculations obtained within the dielectric formalism framework. The energy loss of an original transmitted  $H_2^+$  molecular ion is similar to the calculated electronic energy loss of the  $H_2^+$  molecular ion, while the energy loss of a recombined  $H_2^+$  molecular ion is similar to twice the calculated energy loss of a proton. The same happens for the energy straggling; the energy straggling of the original transmitted molecular ion is similar to the calculated  $H_2^+$  electronic energy straggling, while the energy straggling of the recombined molecular ion is similar to twice the proton electronic energy straggling.

In conclusion, the computer code that we have developed reproduces satisfactorily the main features that appear in the dissociation, recombination, and transmission of  $H_2^+$  molecular ions through thin carbon foils.

#### ACKNOWLEDGMENTS

This work was financed by the Spanish Ministerio de Ciencia y Tecnología (through Project No. BFM2003-04457-C02-01) and the Spanish Ministerio de Educación, Cultura y Deporte (M.D.B.-C.). M.D.B.-C. thanks the Fundación Séneca for partial financial support and J. Barriga for fruitful discussions.

- [1] N. Bohr, K. Dan. Vidensk. Selsk. Mat. Fys. Medd. 18, No. 8 (1948).
- [2] M. J. Gaillard, J. C. Poizat, A. Ratkowski, and J. Remillieux, Nucl. Instrum. Methods 132, 69 (1976).
- [3] R. García-Molina and M. D. Barriga-Carrasco, Phys. Rev. A 68, 054901 (2003).
- [4] J. C. Poizat and J. Remillieux, Phys. Lett. 34A, 53 (1971).
- [5] N. Cue, N. V. de Castro Faria, M. J. Gaillard, J. C. Poizat, and J. Remillieux, Nucl. Instrum. Methods 170, 67 (1980).
- [6] N. Cue, N. V. de Castro-Faria, M. J. Gaillard, J. C. Poizat, J. Remillieux, D. S. Gemmell, and I. Plesser, Phys. Rev. Lett. 45, 613 (1980).
- [7] J. Remillieux, Nucl. Instrum. Methods 170, 31 (1980).
- [8] W. Brandt, R. Laubert, and A. Ratkowski, Nucl. Instrum. Methods 132, 57 (1976).
- [9] N. D. Mermin, Phys. Rev. B 1, 2362 (1970).
- [10] I. Abril, R. García-Molina, C. D. Denton, F. J. Pérez-Pérez, and N. R. Arista, Phys. Rev. A 58, 357 (1998).
- [11] J. C. Moreno-Marín, I. Abril, and R. García-Molina, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B 193, 30 (2002).
- [12] I. N. Levine, *Quantum Chemistry* (Prentice-Hall, Englewood Cliffs, NJ, 1991).
- [13] T. Kaneko, Phys. Rev. A 51, 535 (1995).
- [14] M. D. Barriga-Carrasco and R. García-Molina, Phys. Rev. A 68, 062902 (2003).
- [15] Y. Suzuki, M. Fritz, K. Kimura, M. Mannami, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, and H. Ikegami, Phys. Rev. A 50, 3533 (1994).

M. D. BARRIGA-CARRASCO AND R. GARCIA-MOLINA

PHYSICAL REVIEW A 70, 032901 (2004)

- [16] W. H. Escovitz, T. R. Fox, and R. Levi-Setti, *IEEE Trans. Nucl. Sci.* NS-26, 1147 (1979).
- [17] R. Levi-Setti, K. Lam, and T. R. Fox, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* 194, 281 (1982).
- [18] T. R. Fox, K. Lam, and R. Levi-Setti, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res.* 194, 285 (1982).
- [19] M. Fritz, K. Kimura, Y. Suzuki, and M. Mannami, *Phys. Rev. A* 50, 2405 (1994).
- [20] R. Garcia-Molina, C. D. Denton, I. Abril, and N. R. Arista, *Phys. Rev. A* 62, 012901 (2000).
- [21] W. Möller, G. Pospiech, and G. Scharner, *Nucl. Instrum. Methods* 130, 265 (1975).
- [22] J. F. Ziegler, J. P. Biernack, and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, The Stopping and Ranges of Ions in Matter Vol. 1 (Pergamon, New York, 1985).
- [23] M. Nastasi, J. W. Mayer, and J. K. Hirvonen, *Ion-Solid Interactions: Fundamentals and Applications* (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1996).
- [24] R. Garcia-Molina, I. Abril, C. D. Denton, and N. R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 164-165, 310 (2000).
- [25] W. L. Walters, D. G. Costello, J. G. Skofronick, D. W. Palmer, W. E. Kane, and R. G. Herb, *Phys. Rev.* 125, 2012 (1962).
- [26] M. D. Barriga-Carrasco, Ph.D. thesis, Universidad de Murcia, 2002.
- [27] S. Kreussler and R. Sizmann, *Phys. Rev. B* 26, 520 (1982).
- [28] N. V. de Castro Faria, F. L. Freire, Jr., J. M. F. Jeronimo, E. C. Montenegro, A. G. de Pinho, and D. P. Almeida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 17, 321 (1986).
- [29] A. Aguado, O. Roncero, C. Tablero, C. Sanz, and M. Paniagua, *J. Chem. Phys.* 112, 1240 (2000).
- [30] I. Abril, C. D. Denton, M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, K. Kimura, and N. R. Arista, *Phys. Status Solidi* (to be published).

### Influence of electron capture and loss in the energy distribution of protons dissociated from fast $H_2^+$ molecules in carbon foils

Isabel Abril<sup>1</sup>, Cristian D. Denton<sup>2</sup>, Manuel D. Barriga-Carrasco<sup>3</sup>,  
Rafael García-Molina<sup>3</sup>, Kenji Kimura<sup>4</sup>, and Néstor R. Arista<sup>5</sup>

<sup>1</sup> Departament de Física Aplicada, Universitat d'Alacant, Ap. 99, 03080 Alacant, Spain

<sup>2</sup> Departamento de Física, Universidad Técnica Federico Santa María, Casilla 110V, Valparaíso, Chile

<sup>3</sup> Departamento de Física, Universidad de Murcia, Apartado 4021, 30080 Murcia, Spain

<sup>4</sup> Department of Engineering Physics and Mechanics, Kyoto University, Kyoto 606-8501, Japan

<sup>5</sup> Instituto Balseiro, Centro Atómico Bariloche, RA-8400 Bariloche, Argentina

Received 19 December 2003, revised 19 May 2004, accepted 19 May 2004

Published online 12 July 2004

PACS 34.50.Bw, 79.20.Rf

We have measured and calculated the energy distribution at zero exit angle of the proton fragments resulting from the dissociation of fast  $H_2^+$  molecules when traversing carbon foils of different thicknesses. We discuss the role played by several processes that take place during the motion of the projectiles through the foil, in particular by the electron capture and loss processes, in order to explain the structure of the proton energy distribution.

© 2004 WILEY-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim

**1 Introduction** The interaction of fast projectiles with solids provides a good tool to study characteristic properties of the target or the projectile. In particular, if the projectile is a molecular ion, during the interaction with the solid some characteristic effects appear associated with the closeness of the molecular constituents [1]. When a fast  $H_2^+$  molecule penetrates into a solid it loses its binding electron in the first atomic layers [2], resulting in two protons in correlated motion. The interaction of each proton with the electrons and nuclei of the solid is influenced by the behaviour of its partner. Many consequences of this “vicinage effect” have been discussed both experimentally and theoretically (see Ref. [1] for a complete list of references) but there are still several phenomena that are worth to study. In particular, it has been established that when a  $H_2^+$  molecular ion impinges on a solid the yield of neutral fragments is larger than the corresponding yield obtained with  $H^+$  beams [3, 4]. Moreover, the analysis of the energy spectra of the fragments dissociated from the  $H_2^+$  ions could give information about the charge state fractions of the hydrogen ions inside the target [5, 6].

In this work we present measurements and simulations of the energy distribution, at zero exit angle, of the proton fragments dissociated from fast  $H_2^+$  molecular ions incident on carbon foils of different thicknesses. The projectile initial energy is 0.5 MeV/proton and the dwell time ranges from  $\sim 1$  to  $\sim 6$  fs. The aim of this paper is to analyze how the processes of electron capture and loss by the fragments dissociated from the  $H_2^+$  molecular ions affect their energy distribution; moreover, the appearance of a small peak in the central region of the energy distribution and its dependence with the foil thickness can be understood in terms of these charge exchange processes.

\*Corresponding author: e-mail: isa@uam.es, Phone: +34 96 500 95 70, Fax: +34 96 500 97 26

**2 Experimental setup** The experimental apparatus we have used was described previously [7], and so we will mention here only the specific characteristics of this experiment relevant to our subsequent discussion. A beam of 0.5 MeV/proton  $\text{H}_2^+$  molecular ions from the 4-MV Van de Graaff accelerator of the Kyoto University was collimated by a series of apertures and introduced into a UHV scattering chamber (base pressure  $4 \times 10^{-10}$  Torr). The beam size and divergence were, respectively, less than 50  $\mu\text{m}$  and 0.1 mrad on the target. The targets were self-supporting carbon foils with thicknesses in the range  $\sim 2$  to  $10 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , which were estimated by measuring the energy losses of 0.5 MeV  $\text{H}^+$  ions transmitted through the foils and comparing them with tabulated stopping power values [8]. The protons resulting from the dissociation of the  $\text{H}_2^+$  ions upon transmission through the foil were collected and energy analyzed by a  $90^\circ$  sector magnetic spectrometer. The acceptance angle of the spectrometer was 0.02  $\mu\text{sr}$  and its energy resolution was 0.1%, including the energy spread of the incident beam.

**3 Computer simulation** In order to calculate the energy distribution of the protons dissociated from a  $\text{H}_2^+$  molecule in a solid we have improved a previous computer code [9, 10] to simulate the trajectory of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion at the beginning of its travel through the solid and the trajectories of each fragment after dissociated from the molecular ion.

Before the dissociation of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion there are two main interactions that take place between the projectile and the target: the self-retarding force (due to the electronic excitations induced in the solid) and the elastic collisions with the target nuclei. After an average time of 0.23 fs [11] the  $\text{H}_2^+$  molecular ion dissociates into two fragments that travel in a correlated motion, suffering the following interactions: (i) self-retarding force, (ii) wake force due to the electronic excitations induced in the target by the partner fragment, (iii) Coulomb repulsion with its partner (only when both fragments are charged), and (iv) elastic scattering with the target nuclei. Outside the material the exiting fragments only feel the Coulomb repulsion when both emerge as protons.

Our computer code combines the numerical integration of Newton equations to describe the dynamics of the projectiles motion, and a Monte Carlo approach [12] to account for the elastic scattering of the projectiles with the target nuclei; the effect of coherent scattering is negligible in this energy range [9]. The self-retarding force acting on the  $\text{H}_2^+$  molecular ion and the dissociated fragments, the wake force and the energy loss straggling was calculated within the dielectric formalism framework [13, 14]; details of the calculation for the different type of projectiles ( $\text{H}_2^+$ ,  $\text{H}^+$ ,  $\text{H}^0$ ) can be found in Refs. [15, 16]. The response of the stopping medium to the motion of fast particles is described by a linear combination of Mermin type energy loss functions for the outer-electrons excitations and a generalized oscillator strength in the hydrogenic approach for the inner-shell electrons [14, 17, 18].

We have also considered the possibility that each dissociated fragment can capture or lose electrons during its motion through the target; the  $\text{H}^-$  fraction is negligible in the energy range studied here [19] and so the fragments can only be  $\text{H}^+$  and  $\text{H}^0$  (i.e., the fractions  $\Phi_0$  and  $\Phi_+$  of atomic hydrogen and protons, respectively, satisfy  $\Phi_0 + \Phi_+ = 1$ ). In order to implement in the computer code the process of charge exchange, in which electrons are captured or lost by the fragments, at each timestep of the finite difference algorithm we use a Monte Carlo procedure to draw the fragment charge state (neutral or proton) according to a prescribed equilibrium neutral charge fraction  $\Phi_0$ . When a fragment is in the neutral state it does not experience the Coulomb repulsion with its partner, but it feels a self-retarding force that is different from the one felt by a proton, therefore the wake force has been incorporated into our computer code considering the possible combinations when the fragments are both protons, both neutrals, or a proton and a neutral. When the fragments reach the rear surface of the foil they continue through the vacuum, until they reach the detector, without changing their final charge state and feeling a Coulomb repulsion only when both fragments are charged. We have "collected" only the energy spectrum of those protons whose exit angle was less than the spectrometer acceptance angle around the forward direction. These energy distributions were convoluted with a Gaussian whose standard deviation depends on the energy resolution of the spectrometer and the foil roughness coefficient, which are 0.1% and 10%, respectively. To obtain a good statistics in our results we need to simulate up to  $3 \times 10^6$  histories.

**4 Results** In order to check the dependence of our simulations with the neutral fraction  $\Phi_0$ , Fig. 1 depicts the histograms (for the cases  $\Phi_0 = 0, 0.005$  and  $0.01$ ) of the energy distribution of protons dissociated from a  $0.5 \text{ MeV/proton H}_2^+$  beam and collected by the detector after they leave at zero angle a  $2.1 \mu\text{g/cm}^2$ -thick amorphous carbon foil. The two large peaks in the energy spectra are due to the Coulomb explosion (mainly at the exit of the foil), and their asymmetry in size is understood in terms of the wake force, which tends to align the trailing fragment behind the leading one [5, 9, 10]. When  $\Phi_0 = 0$  (i.e., all fragments travelling inside the target are protons), the small amount of protons that appear between these larger peaks is produced mainly by the nuclear scattering with the target nuclei, which in part inhibits the alignment tendency of the wake force. However we can see how a central peak develops as the fraction  $\Phi_0$  of hydrogen atoms increases, because now the fragments do not repel each other in a nonnegligible part of the pathlength through the solid, and mainly because then there is a growing number of protons that do not experience a Coulomb repulsion at the exit of the foil. Therefore, electron capture and loss by the fragments clearly affects the detailed shape of the exiting proton energy distribution. Comparing the simulations shown in Fig. 1 for different neutral fractions of dissociated fragments with the corresponding experimental data (represented by symbols), we have adopted the approximated value  $\Phi_0 = 0.005$  as the one to do the calculations for all the foil thicknesses employed in the experiments. This value of  $\Phi_0$  is larger than the one found for protons in amorphous carbon at this energy ( $\Phi_0 \sim 0.0025$  [19]), which agrees with the reported fact [3, 4] that the neutralization of molecular fragments is enhanced in comparison with the case of isolated protons. The difference between the neutral fraction resulting from molecular or ionic beams can be attributed to the electron capture enhancement due to the proximity of molecular fragments [20, 21].

In Fig. 2 we show the energy distribution of the proton fragments, resulting from the dissociation of  $0.5 \text{ MeV/proton H}_2^+$  molecular ions, which reach the detector after traversing carbon foils of thicknesses in the range  $\sim 2$  to  $10 \mu\text{g/cm}^2$ ; all the energy distributions are normalized to have unit area. Again, the energy distributions present two large peaks corresponding to those fragments that have lost or gained energy, respectively, with respect to the initial energy, due to the Coulomb explosion process that tend to accelerate the leading protons and decelerate the trailing ones. The position of the peaks is not symmetric around the incident energy because each fragment loses energy due to electronic excitations induced in the solid by itself and by its partner; the trailing peak is higher due to the alignment tendency of the wake force. For thicker foil thicknesses the region between the peaks becomes more filled with particles due to the major importance of the multiple scattering at larger thicknesses, which broadens the angular distributions [9, 10]; the central peak of the energy distribution is more noticeable at small thicknesses because at large thicknesses it is masked by the latter effect. The ratio between both contributions (charge-exchange and elastic scattering) to the height of

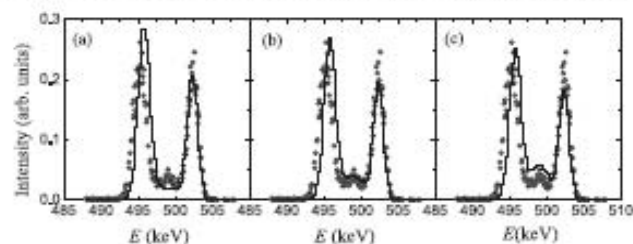


Fig. 1 Energy distribution of the protons dissociated from a  $0.5 \text{ MeV/proton H}_2^+$  molecular ion, exiting at zero angle after traversing a  $2.1 \mu\text{g/cm}^2$ -thick amorphous carbon foil. The circles correspond to the experimental data while the histograms represent the results of the simulation with three different values of the neutral fraction  $\Phi_0$ : (a) 0, (b) 0.005 and (c) 0.01.



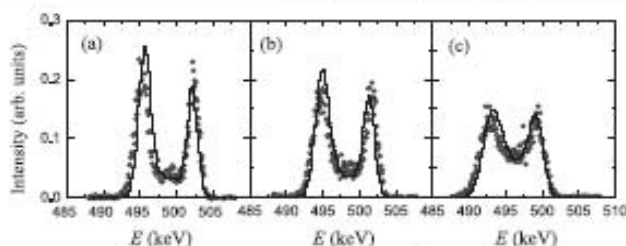


Fig. 2 Same as Fig. 1, for the foil thicknesses: (a)  $2.6 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ , (b)  $4.35 \mu\text{g}/\text{cm}^2$  and (c)  $9.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . The simulations were done using  $\Phi_0 = 0.005$ .

the central peak is approximately 1, 0.5, 0.1 and 0, respectively, for the foil thicknesses 2.1, 2.6, 4.35 and  $9.3 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ . This central peak (which disappears as we move from the thinner to the thicker foils) is due to those protons which have not undergone the Coulomb explosion process at the exit of the foil because their partner captured an electron just before leaving the target and emerged as a neutral particle.

The slightly smaller separation of the peaks in the simulations, as compared to the experimental data, can be explained by the fact that the experimental initial internuclear distribution of the  $\text{H}_2^+$  molecular ion can be shrinked [22] in comparison to the theoretically calculated by us using the Franck-Condon principle; this would provide larger initial potential energies that lead to a larger separation of the Coulomb peaks. On the other hand, the expected asymmetry in the peak heights [23, 24] for the thinner foils does not appear experimentally possibly due to a problem with the energy calibration of the detector.

**5 Conclusions** We have presented experimental data and computer simulations of the proton energy distribution resulting from dissociated  $0.5 \text{ MeV/proton } \text{H}_2^+$  in thin carbon foils of several thicknesses. The big peaks in the distribution are due to the Coulomb explosion process, whereas the small central peak appearing at the thinner foils is a consequence of the electron capture and loss processes, which frustrates the Coulomb explosion in a considerable part of the projectile pathlength, mainly after exiting the rear surface of the target. The neutral fraction value that fits better to the experimental energy distributions is  $\Phi_0 = 0.005$ , this value is higher than the neutral fraction found experimentally for atomic hydrogen [19]. The simulations reproduce reasonably well the main features of the experimental data, confirming that the electronic capture and loss by the fragments is important to understand the shape of the dissociated-proton energy spectrum.

The comparison of experiments and simulations as those reported in this work could be used to give a rough estimation for the charge fraction of a given experimental situation by adjusting this value to fit the central peak in the energy distribution of the protons dissociated from fast  $\text{H}_2^+$  molecular ions.

**Acknowledgement** We are grateful to the members of the Department of Nuclear Engineering of Kyoto University for the use of the 4-MV Van de Graaff accelerator. Economical support was provided by the Spanish DGESIC (BFM2000-1050-CO1-01A2 and BFM2003-04457-CO2-01A2).

## References

- [1] N. R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164**, 108 (2000).
- [2] J. Remillieux, *Nucl. Instrum. Methods* **170**, 31 (1980).

- [3] B. T. Meggin, K. G. Harrison, and M. W. Lucas, *J. Phys. B* **6**, L362 (1973).
- [4] N. V. de Castro Faria, F. L. Freire, Jr., E. C. Montenegro, and A. G. de Pinho, *J. Phys. B* **19**, 1781 (1986).
- [5] R. Laubert and F. K. Chen, *Phys. Rev. Lett.* **40**, 174 (1978).
- [6] C. D. Denton, I. Abriil, M. D. Barriga-Carmoso, R. García-Molina, G. H. Lamschuer, J. C. Eckardt, and N. R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **193**, 198 (2002).
- [7] M. Fritz, K. Kimura, Y. Suzuki, and M. Mammari, *Phys. Rev. A* **50**, 2405 (1994).
- [8] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark, *The stopping and range of ions in solids*, Vol. 1 (Pergamon, New York, 1985).
- [9] R. García-Molina, I. Abriil, C. D. Denton, and N. R. Arista, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **164-165**, 310 (2000).
- [10] R. García-Molina, C. D. Denton, I. Abriil, and N. R. Arista, *Phys. Rev. A* **62**, 012901 (2000).
- [11] Y. Suzuki, M. Fritz, K. Kimura, M. Mammari, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro, and H. I. Kogami, *Phys. Rev. A* **50**, 3533 (1994).
- [12] W. Möller, G. Propprich, and G. Schneider, *Nucl. Instrum. Methods* **130**, 265 (1975).
- [13] J. Lindhard and K. Dan, *Vidensk. Selsk. Mat.-Fys. Medd.* **28(3)** (1954).
- [14] I. Abriil, R. García-Molina, C. D. Denton, F. J. Pérez-Pérez, and N. R. Arista, *Phys. Rev. A* **58**, 357 (1998).
- [15] R. García-Molina and M. D. Barriga-Carmoso, *Phys. Rev. A* **68**, 054901 (2003).
- [16] M. D. Barriga-Carmoso and R. García-Molina, *Phys. Rev. A* **68**, 062902 (2003).
- [17] I. Abriil, R. García-Molina, N. R. Arista and C. F. Sanz-Navarro, *Nucl. Instrum. Methods B* **190**, 89 (2002).
- [18] J. C. Moreno-Martín, I. Abriil, and R. García-Molina, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **193**, 30 (2002).
- [19] N. V. de Castro Faria, F. L. Freire, Jr., J. M. F. Jernyma, E. C. Montenegro, A. G. de Pinho, and D. P. Almeida, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **17**, 321 (1996).
- [20] A. Branelle, S. Della-Negra, J. Depierre, D. Jacquet, Y. Le Beyec, and M. Pantrier, *Phys. Rev. A* **59**, 4456 (1999).
- [21] S. Heredia-Avelaz, R. García-Molina, and N. R. Arista, *Europhys. Lett.* **54**, 729 (2001).
- [22] S. Kruhn et al., *Phys. Rev. A* **62**, 032713 (2000).
- [23] D. S. Gemmell, *Nucl. Instrum. Methods* **194**, 255 (1982).
- [24] J. Miao, B. Yang, S. Hao, Z. Jiang, M. Shi, and N. Cui, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **13**, 181 (1996).





# Referencias

- Abramowitz M. e I. Stegun 1972, *Handbook of Mathematical Functions*, Dover, New York.
- Abril I., R. Garcia-Molina y N. R. Arista 1994, Proton energy loss in allotropic forms of carbon, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **90**, 72.
- Abril I., R. Garcia-Molina, C. D. Denton, F. J. Pérez-Pérez y N. R. Arista 1998, Dielectric description of wakes and stopping powers in solids, *Physical Review A* **58**, 357.
- Abril I., Denton C. D., M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, K. Kimura y N. R. Arista 2004, Influence of electron capture and loss in the energy distribution of protons dissociated from fast H<sub>2</sub><sup>+</sup> molecules in thin carbon foils, *Physica Status Solidi (c)* **1**, S21-S25. Ver apéndice E.
- Aguado A., O. Roncero, C. Tablero, C. Sanz y M. Paniagua 2000, Global potential energy surfaces for the H<sub>3</sub><sup>+</sup> system. Analytical representation of the adiabatic ground-state 1<sup>1</sup> A' potential, *Journal of Chemical Physics* **112**, 1240.
- Allen M. P. y D. J. Tildesley 1987, *Computer simulation of liquids*, Oxford University Press, Oxford.
- Allison S. K. 1958, Experimental results on charge-changing collisions of hydrogen and helium atoms and ions at kinetic energies above 0.2 keV, *Reviews of Modern Physics* **30**, 1137.

- Arista N. R. 1978, Energy loss of correlated charges in an electron gas, *Physical Review B* **18**, 1.
- Arista N. R. 2000, Stopping of molecules and clusters, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **164/165**, 108.
- Arnau A. 1989, *Interacciones dinámicas de partículas cargadas con la materia (en superficie y volumen)*. Tesis doctoral, Universidad del País Vasco, Leioa.
- Atkins P. W. 1989, *Molecular quantum mechanics*, 2nd ed. Oxford University Press, Oxford.
- Barriga-Carrasco M. D. y R. Garcia-Molina 2003, Vicinage forces between molecular and atomic fragments dissociated from small hydrogen clusters and their effects on energy distributions, *Physical Review A* **68**, 062902. Ver apéndice E.
- Barriga-Carrasco M. D. y R. Garcia-Molina 2004, Simulations of the energy spectra of original versus recombined  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin foils, *Physical Review A* **70**, 032901. Ver apéndice E.
- Bastida A. 2001, *Dinámica molecular*. Curso de doctorado, Universidad de Murcia, Murcia.
- Bethe H. A. 1930, Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie, *Annalen der Physik (Leipzig)* **5**, 325.
- Bloch F. 1933, Zur Bremsung rasch bewegter Teilchen beim Durchgang durch die Materie, *Annalen der Physik (Leipzig)* **6**, 287
- Bohr N. 1913, On the Constitution of Atoms and Molecules, *Philosophical Magazine* **26**, 1.
- Born M. y J. R. Oppenheimer 1927, Zur Quantumtheorie der Molekülen, *Annalen der Physik* **84**, 457.

- Brandt W., R. Laubert y A. Ratkowski 1976, Propagation of swift atomic clusters through solids, *Nuclear Instruments and Methods* **132**, 57.
- Brandt W., A. Ratkowski y R. H. Ritchie 1974, Energy loss of swift proton clusters in solids, *Physical Review Letters* **33**, 1325.
- Brandt W. y R. H. Ritchie 1976, Penetration of swift ion clusters through solids, *Nuclear Instruments and Methods* **132**, 43.
- Bret A. y C. Deutsch 1993, Straggling of an extended charge distribution in partially degenerate plasma, *Physical Review E* **48**, 2989.
- Bringa E. M. y N. R. Arista 1995, Collective effects in the energy loss of ion beams in fusion plasmas, *Physical Review E* **52**, 3010.
- Brongersma H. H. y R. A. van Santen (eds.) 1991, Fundamental Aspects of Heterogeneous Catalysis Studied by Particle Beams, *NATO ASI Series B: Physics* **265**, Plenum, New York.
- Château-Thierry A. y A. Gladieux 1975, Experimental neutral charge fractions in proton beams emerging from solids, *Proceedings of the 5th International Conference on Atomic Collisions in Solids*, eds. S. Datz, B. R. Appleton and C. D. Moak, Plenum Press, New York, 307.
- Château-Thierry A., A. Gladieux y B. Delaunay 1976, Experimental neutral charge fractions in proton beams emerging from solids, *Nuclear Instruments and Methods* **132**, 553.
- Cue N., N. V. Castro Faria, M. J. Gaillard, J. C. Poizat y J. Remillieux 1979a, Transmission of fast  $H_3^+$  molecules through thin carbon foils, *Physics Letters* **72A**, 104.
- Cue N., N. V. de Castro Faria, M. J. Gaillard, J. C. Poizat y J. Remillieux 1980a, Electron loss and capture cross sections of 800 keV  $amu^{-1}$  H and He species in carbon foils, *Nuclear Instruments and Methods* **170**, 67.

- Cue N., N. V. de Castro Faria, M. J. Gaillard, J. C. Poizat, J. Remillieux, D. S. Gemmell y I. Pleaser 1980b, Transmission of fast  $H_2^+$  through thin foils, *Physical Review Letters* **45**, 613.
- Cue N., M. J. Gaillard, J. C. Poizat, J. Remillieux y J. L. Subtil 1979b, Survival of Fast Molecular Ions Traversing a Thin Foil, *Physical Review Letters* **42**, 959.
- de Castro Faria N. V., F. L. Freire Jr., J. M. F. Jeronymo, E. C. Montenegro, A. G. de Pinho y D. P. Almeida 1986a, Charge equilibrium in swift hydrogen beams emerging from carbon foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **17**, 321.
- de Castro Faria N. V., F. L. Freire Jr., E. C. Montenegro y A. G. de Pinho 1986b, Isotopic effects in the production of neutrals and negative ions from the foil break-up of  $H_2^+$ ,  $HD^+$  and  $D_2^+$ , *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **19**, 1781.
- Denton C. D. 1997, *Interacción de haces de  $H_n^+$  ( $n=1,2,3$ ) con láminas delgadas*. Tesis doctoral, Universitat d'Alacant, Alacant.
- Denton C. D., I. Abril, M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, G. H. Lantschner, J. C. Eckardt y N. R. Arista 2002a, Effect of the neutral charge fraction in the Coulomb explosion of  $H_2^+$  ions through aluminum foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, en prensa.
- Denton C. D., M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, K. Kimura, I. Abril y N. R. Arista 2002b, Influence of electron capture and loss in the energy distribution of protons dissociated from fast  $H_2^+$  molecules in thin foils, pendiente de publicación.
- Denton C. D., R. Garcia-Molina, I. Abril y N. R. Arista 1998, Contribution of nuclear scattering to the energy loss distribution of protons in carbon foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **135**, 45.

- Denton C. D., F. J. Pérez-Pérez, I. Abril, R. Garcia-Molina y N. R. Arista 1996, Energy loss of swift  $H_3^+$ -molecule ions in carbon foils, *Europhysics Letters* **35**, 499.
- Denton C. D., F. J. Pérez-Pérez, I. Abril, R. Garcia-Molina y N. R. Arista 1997, Velocity and orientational dependence of  $H_3^+$  energy loss, *Radiation Effects and Defects in Solids* **142**, 223.
- Denton C. D., I. Abril, M. D. Barriga-Carrasco, R. Garcia-Molina, G. H. Lantschner, J. C. Eckardt y N. R. Arista 2002, Effect of the neutral charge fraction in the coulomb explosion of  $H_2^+$  ions through aluminum foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **193**, 198. Ver apéndice E.
- Deutsch C. y G. Maynard 2000, Stopping of pointlike charges in a dense electron fluid, *Recent Research Developments in Plasmas* **1**, 1.
- Eckardt J. C., G. Lantschner, N. R. Arista y R. A. Baragiola 1978, Electronic stopping of slow molecular ions in solids, *Journal of Physics C* **11**, L851.
- Engledfield M. J. 1972, *Group theory and the coulomb problem*, Editorial Wiley, New York.
- Escovitz W. H., T. R. Fox y R. Levi-Setti 1979a, Energy spectra of dissociation and recombination products of  $H_2^+$  emergent from ultra thin carbon films below the Bohr velocity, *IEEE Transactions on Nuclear Science* **NS-26**, 1147.
- Escovitz W. H., T. R. Fox y R. Levi-Setti 1979b, Recombination yield of  $H_2^+$  emergent from ultra thin carbon films below the Bohr velocity, *IEEE Transactions on Nuclear Science* **NS-26**, 1395.
- Echenique P. M., F. Flores y R. H. Ritchie 1990, Dynamic screening of ions in condensed matter, *Solid State Physics* **43**, 229.

- Farizon M., B. Farizon-Mazuy, N. V. de Castro Faria y H. Chermette 1991, Ab initio structure calculations of hydrogen ionic clusters, *Chemical Physics Letters* **177**, 451.
- Farizon M., N.V. de Castro Faria, B. Farizon-Mazuy y M. J. Gaillard 1992, Interaction of hydrogen  $H_n^+$  clusters with thin carbon foils, *Physical Review A* **45**, 179.
- Farizon M., N. V. de Castro Faria, B. Farizon-Mazuy y M. J. Gaillard 1997, Model for hydrogen atom production from the dissociation of fast  $H_n^+$  cluster ions by thin foils, *Physical Review A* **55**, 335.
- Fermi E. 1940, The ionization loss of energy in gases and condensed materials, *Physical Review* **57**, 485.
- Fox T. R., K. Lam y R. Levi-Setti 1982,  $H_2^+$  traversing ultra-thin carbon foils: exiting molecular states at 12.5 and 25 keV/amu, *Nuclear Instruments and Methods* **194**, 285.
- Fritz M., K. Kimura, Y. Susuki y M. Mannami 1994, Energy loss of carbon-transmitted 1-MeV  $H_2^+$ , *Physical Review A* **50**, 2405.
- Funsten H. O., B. L. Barraclough y D. J. McComas 1993, Shell effects observed in exit charge state distributions of 1-30 keV atomic projectiles transiting ultrathin carbon foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **80/81**, 49.
- Gaillard M. J., D. S. Gemmell, G. Goldring, I. Levine, W. J. Pietsch, A. J. Ratkowski, J. Remillieux, Z. Vager y B. J. Zabransky 1978b, Experimental determination of the structure of  $H_3^+$ , *Physical Review A* **17**, 1797.
- Gaillard M. J., J. C. Poizat, A. Ratkowski y J. Remillieux 1976, The dependence of  $H_2^+$  molecular-ion yields on the proton neutral fraction, *Nuclear Instruments and Methods* **132**, 69.

- Gaillard M. J., J. C. Poizat, A. Ratkowski, J. Remillieux y M. Auzas 1977, Nonequilibrium effects in the proton neutral fraction emerging from solids bombarded with MeV  $H^0$ ,  $H^+$ ,  $H_2^+$ , and  $H_3^+$  beams, *Physical Review A* **16**, 2323.
- Gaillard M. J., J. C. Poizat y J. Remillieux 1975, *Proceedings of the 5th International Conference on Atomic Collisions in Solids* (Gatlinburg), eds. S. Datz, B. R. Appleton and C. D. Moak, Plenum Press, New York, vol. **1**, 681.
- Gaillard M. J., J. C. Poizat y J. Remillieux 1978a, Observation of MeV dissociative ion  $H_2^+$ s emerging from very thin foils, *Physical Review Letters* **41**, 159.
- Garcia-Molina R., I. Abril, C. D. Denton y N. R. Arista 2000a, Exit angle, energy loss and internuclear distance distributions of ion  $H_2^+$  dissociated when traversing different materials, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **164/165**, 310.
- Garcia-Molina R., C. D. Denton, I. Abril y N. R. Arista 2000b, Energy-loss and exit-angle distributions of fragmented  $H_2^+$  ions after traversing carbon foils, *Physical Review A* **62**, 012901.
- Garcia-Molina R. y M. D. Barriga-Carrasco 2003, Simulation of the molecular recombination yield for swift  $H_2^+$  ions through thin carbon foils, *Physical Review A* **68**, 054901. Ver apéndice E.
- Gemmell D. S. 1980, Determining the stereochemical structures of molecular ions by “Coulomb-explosion” techniques with fast (MeV) molecular ion beams, *Chemical Reviews* **80**, 301.
- Gemmell D. S. 1981, The “Coulomb-explosion” technique for determining the geometrical structures of molecular ions, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **191**, 425.
- Gemmell D. S., J. Remillieux, J. C. Poizat, M. J. Gaillard, R. E. Holland y Z. Vager 1975, Evidence for alignment effect in the motion of swift ion clusters through solids, *Physical Review Letters* **34**, 1420.



- Goldstein H. 1977, *Mecánica clásica*, Aguilar, Madrid.
- Gras-Martí A., H. M. Urbassek, N. Arista y F. Flores 1991 (eds.), *Interaction of charged particles with solids and surfaces*, Plenum Press, New York.
- Heredia-Avalos S., R. Garcia-Molina y N. R. Arista 2001, Vicinage effects in the charge state of swift molecular constituents traversing thin foils, *Europhysics Letters* **54**, 729
- Jakas M. M. y N. E. Capuj 1995, Monte Carlo calculations of the energy loss for  $H_2^+$  molecular ions transmitted through thin C and Al foils, *Physical Review A* **52** 439.
- Kaneko T. 1989, Wave-packet theory of stopping of bound electrons, *Physical Review A* **40**, 2188.
- Kaneko T. 1991, Stopping power for hydrogen-like and helium-like particles - Bethe theory, *Physical Review A* **43**, 4780.
- Kaneko T. 1994, Energy loss of partially-stripped ions in pre-equilibrium frozen charge states, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **90**, 58.
- Kaneko T. 1995, Inelastic energy loss of  $H_2^+$  and  $H_3^+$  ions correlated with molecular orientation, *Physical Review A* **51**, 535.
- Kaneko T. 1996, Energy-loss and straggling of molecular ions moving in solids, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **115**, 43.
- Kreckel H. 2000, *Coulomb explosion imaging von  $H_3^+$* . Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, Heidelberg.
- Kreussler S. y R. Sizmann 1982, Neutralization of 50-230 keV hydrogen ions which have penetrated Al, Au, C and Cs films, *Physical Review B* **26**, 520.

- Lammich L. 2001, Comunicación privada.
- Laubert R. 1979, Collisional atomic physics with molecular projectiles, *IEEE Transactions on Nuclear Science* **NS-26**, 1020.
- Laubert R. y F. K. Chen 1978, Experimental method for testing the potential of moving ions in solids, *Physical Review Letters* **40**, 174.
- Levine I. R. 1977, *Química cuántica*, AC, Madrid.
- Levi-Setti R., K. Lam y T. R. Fox 1982,  $H_2^+$  traversing ultra-thin carbon foils: cluster effects in the energy loss at 12.5 and 25 keV/amu, *Nuclear Instruments and Methods* **194**, 281.
- Lindhard J. 1954, On the properties of a gas of charged particles, *Det Kongelige Danske Videnskabernes Selskab, Matematisk-fysiske Meddelelser* **28**, No. 8.
- Lindhard J. y A. Winther 1964, Stopping power of electron gas and equipartition rule, *Det Kongelige Danske Videnskabernes Selskab, Matematisk-fysiske Meddelelser* **34**, No. 4.
- Maor D., P. J. Cooney, A. Faibis, E. P. Kanter, W. Koenig y B. J. Zabransky 1985, Charge-state distributions of nitrogen ions resulting from the foil-induced dissociation of 4.2-MeV  $N_2^+$  ions, *Physical Review A* **32**, 105.
- Mermin N. D. 1970, Lindhard dielectric function in the relaxation-time approximation, *Physical Review B* **1**, 2362.
- Miao J., B. Yang, S. Hao, Z. Jiang, M. Shi y N. Cue 1986, Internuclear separations from foil breakup of fast  $H_2^+$ ,  $H_3^+$ ,  $D_2^+$  and  $D_3^+$  molecules, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **13**, 181.
- Moller W., G. Pospiech y G. Schrieder 1975, Multiple scattering calculations on ions passing through thin amorphous foils, *Nuclear Instruments and Methods* **130**, 265.

- Moreno-Marín J. C., I. Abril y R. Garcia-Molina 2002, Stopping power calculation of rubidium and strontium for protons, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, aceptado.
- Nastasi M., J. W. Mayer y J. K. Hirvonen 1996, *Ion-Solid Interactions* (Cambridge University Press, Cambridge).
- Pauling L. y E. B. Wilson, Jr. 1963, *Intorduction to quantum mechanics. With applications to chemistry*, Dover, New York.
- Pérez-Pérez F. J., C. D. Denton, I. Abril, R. Garcia-Molina y N. R. Arista 1997, Vicinage effects in the stopping power of  $H_3^+$  beams in amorphous carbon, *Zeitschrift für Physik D* **41**, 187.
- Phillips J. A. 1955, Charge equilibrium ratios for hydrogen ions from solids, *Physical Review* **97**, 404.
- Planes D. J., R. Garcia-Molina, I. Abril y N. R. Arista 1996, Wavenumber dependence of the energy loss function of graphite and aluminium, *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **82**, 23.
- Poizat J. C. y J. Remillieux 1971, Dissociation of a fast  $H_2^+$  molecular ion beam colliding with thin carbon targets, *Physics Letters* **34A**, 53.
- Press H. W., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling y B. P. Flannery 1992, *Numerical Recipes*, 2<sup>nd</sup> ed. Cambridge University Press, Cambridge.
- Prutton M. (ed.) 1984, *Electronic Properties of Surfaces*, Adam Hilger, Bristol.
- Ray E., R. Kirsch, H. H. Mikkelsen, J. C. Poizat y J. Remillieux 1992, Slowing down of hydrogen clusters in thin foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **69**, 133.
- Remillieux J. 1980, Interactions of fast molecular ions with solids, *Nuclear Instruments and Methods* **170**, 31.

- Rogers F. J., H. C. Graboske Jr. y D. J. Harwood 1970, Bound eigenstates of the static screened Coulomb potential, *Physical Review A* **1**, 1577.
- Rutherford E. 1911, The scattering of  $\alpha$  and  $\beta$  particles by matter and the structure of the atom, *Philosophical Magazine* **21**, 669.
- Ryssel H. y H. Glawischning (eds.) 1982, *Ion Implantation Techniques*, Springer, Berlin.
- Sigmund P. 1992, Scaling laws governing the multiple scattering of diatomic molecules under Coulomb explosion, *Physical Review A* **46**, 2596.
- Steinbeck J. y K. Dettmann 1978, Energy-loss of fast  $H_2^+$  molecules in solids, *Journal of Physics C* **11**, 2907.
- Steuer M. F. y R. H. Ritchie 1989, Intermediate-velocity molecular and atomic ions in solids, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **40/41**, 372.
- Stoner J. O., Jr. 1991, Densities of carbon foils, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A* **303**, 94.
- Susuki Y., M. Fritz, K. Kimura, M. Mannami, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro y H. Ikegami 1994, Stopping power of carbon for 9.6-MeV/amu  $H_2^+$ , *Physical Review A* **50**, 3533.
- Susuki Y., M. Fritz, K. Kimura, M. Mannami, N. Sakamoto, H. Ogawa, I. Katayama, T. Noro y H. Ikegami 1995, Energy loss and dissociation of 10-MeV/amu  $H_3^+$  ions in carbon foils, *Physical Review A* **51**, 3868.
- Tape J. W., W. M. Gibson, J. Remillieux, R. Laubert y H. E. Wegner 1976, Energy loss of atomic and molecular ion beams in thin foils, *Nuclear Instruments and Methods* **132**, 75.
- Turner J. E. 1995, *Atoms, radiation, and radiation protection*, 2nd ed., John Wiley and sons, New York.

- Walters W. L., D. G. Costello, J. G. Skofronick, D. W. Palmer, W. E. Kane y R. G. Herb 1962, Anomalies in Yield Curves over the 992-keV  $\text{Al}^{27}(p, \gamma) \text{Si}^{28}$  Resonance, *Physical Review* **125**, 2012.
- Wang Y.-N. y T.-C. Ma 1993, Vicinage effects in the stopping power for diatomic molecular ions in solids, *Physics Letters A* **178**, 209.
- Wester R. 1999, *Spatial structure of stored molecular ions by Coulomb explosion imaging*, Tesis doctoral, Max-Planck-Institut für Kernphysik, Heidelberg.
- Zajfman D., G. Both, E. P. Kanter y Z. Vager 1990, Multiple scattering of MeV atomic and molecular ions traversing ultrathin films, *Physical Review A* **41**, 2482.
- Ziegler J. F. (ed.) 1988, *Ion Implantation. Science and Technology*, Academic, Boston.
- Ziegler J. F., J. P. Biersack y U. Littmark 1985, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon, New York.